

This Page Is Inserted by IFW Operations  
and is not a part of the Official Record

## **BEST AVAILABLE IMAGES**

Defective images within this document are accurate representations of the original documents submitted by the applicant.

Defects in the images may include (but are not limited to):

- BLACK BORDERS
- TEXT CUT OFF AT TOP, BOTTOM OR SIDES
- FADED TEXT
- ILLEGIBLE TEXT
- SKEWED/SLANTED IMAGES
- COLORED PHOTOS
- BLACK OR VERY BLACK AND WHITE DARK PHOTOS
- GRAY SCALE DOCUMENTS

**IMAGES ARE BEST AVAILABLE COPY.**

**As rescanning documents *will not* correct images,  
please do not report the images to the  
Image Problem Mailbox.**

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



(51) 国際特許分類7 C08L 21/00, 23/16, 45/00, 83/05, C08J 5/00, 9/00		A1	(11) 国際公開番号 WO00/55251
			(43) 国際公開日 2000年9月21日 (21.09.00)
(21) 国際出願番号 PCT/JP00/01547		(72) 発明者 ; および (75) 発明者 / 出願人 (米国についてののみ) 白田 孝(HAKUTA, Takashi)[JP/JP] 川崎雅昭(KAWASAKI, Masaaki)[JP/JP] 菊地義治(KIKUCHI, Yoshiharu)[JP/JP] 仲濱秀斉(NAKAHAMA, Hidenari)[JP/JP] 神田 拓(KODA, Taku)[JP/JP] 亀田 博(KAMEDA, Hiroshi)[JP/JP] 野中修一(NONAKA, Shuichi)[JP/JP] 細谷三樹男(HOSOYA, Mikio)[JP/JP] 石井雄二(ISHII, Yuji)[JP/JP] 有野恭巨(ARINO, Mitsunao)[JP/JP] 〒299-0108 千葉県市原市千種海岸3番地 三井化学株式会社内 Chiba, (JP) 中村 勉(NAKAMURA, Tsutomu)[JP/JP] 平林佐太夫(HIRABAYASHI, Satao)[JP/JP] 吉田武男(YOSHIDA, Takeo)[JP/JP] 〒379-0224 群馬県碓氷郡松井田町大字人見1番地10 信越化学工業株式会社 シリコン電子材料技術研究所内 Gumma, (JP)	
(22) 国際出願日 2000年3月14日 (14.03.00)			
(30) 優先権データ 特願平11/70982 1999年3月16日 (16.03.99) JP 特願平11/149948 ✓ 1999年5月28日 (28.05.99) JP 特願平11/208943 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/208944 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209070 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209071 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209072 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209073 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209074 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209075 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209076 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209077 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209078 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP 特願平11/209079 ✓ 1999年7月23日 (23.07.99) JP			
(71) 出願人 (米国を除くすべての指定国について) 三井化学株式会社(MITSUI CHEMICALS, INC.)[JP/JP] 〒100-6070 東京都千代田区霞が関三丁目2番5号 Tokyo, (JP) 信越化学工業株式会社 (SHIN-ETSU CHEMICAL CO., LTD.)[JP/JP] 〒100-0004 東京都千代田区大手町二丁目6番1号 Tokyo, (JP)		(74) 代理人 鈴木俊一郎(SUZUKI, Shunichiro) 〒141-0031 東京都品川区西五反田七丁目13番6号 五反田山崎ビル6階 鈴木国際特許事務所 Tokyo, (JP)	
		(81) 指定国 CN, KR, US, 欧州特許 (DE, FR, GB)	
		添付公開書類 国際調査報告書	

(54) Title: **CROSSLINKABLE RUBBER COMPOSITION AND USE THEREOF**

(54) 発明の名称 架橋可能なゴム組成物およびその用途

## (57) Abstract

A rubber composition which is crosslinkable with hot air or a hot press and gives a hot-air-crosslinked rubber sheet which receives no scratch on the surface in an HB pencil hardness test and has a compression set of 70% or lower through 22-hour heat treatment at 150°C. The composition comprises: an ethylene/ $\alpha$ -olefin/unconjugated polyene random copolymer rubber wherein the unconjugated polyene is a specific norbornene compound terminated by a vinyl group; and a compound having two or more SiH groups per molecule. It may optionally contain an addition reaction catalyst comprising a platinum-group metal and a reaction inhibitor.

## (57)要約

熱空気（熱風）または熱プレスで架橋可能で、その熱空気架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪みが70%以下であって、具体的には、非共役ポリエンである特定の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物よりなるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム、SiH基を1分子中に2個以上有するSiH基含有化合物、および、必要に応じ白金族元素よりなる付加反応触媒、さらには反応抑制剤を含有してなる架橋可能なゴム組成物

PCTに基づいて公開される国際出願のパンフレット第一頁に掲載されたPCT加盟国を同定するために使用されるコード(参考情報)

AE	アラブ首長国連邦	DM	ドミニカ	KZ	カザフスタン	RU	ロシア
AG	アンティグア・バーブーダ	DZ	アルジェリア	LC	セントルシア	SD	スーダン
AL	アルバニア	EE	エストニア	LI	リヒテンシュタイン	SE	スウェーデン
AM	アルメニア	ES	スペイン	LK	スリ・ランカ	SG	シンガポール
AT	オーストリア	FI	フィンランド	LR	リベリア	SI	スロヴェニア
AU	オーストラリア	FR	フランス	LS	レソト	SK	スロヴァキア
AZ	アゼルバイジャン	GA	ガボン	LT	リトアニア	SL	シエラ・レオネ
BA	ボスニア・ヘルツェゴビナ	GB	英国	LU	ルクセンブルグ	SN	セネガル
BB	バルバドス	GD	グレナダ	LV	ラトヴィア	SZ	スワジランド
BE	ベルギー	GE	グルジア	MA	モロッコ	TD	チャード
BF	ブルキナ・ファソ	GH	ガーナ	MC	モナコ	TG	トーゴ
BG	ブルガリア	GM	ガンビア	MD	モルドヴァ	TH	タイ
BJ	ベナン	GN	ギニア	MG	マダガスカル	TJ	タジキスタン
BR	ブラジル	GR	ギリシャ	MK	マケドニア旧ユーゴスラヴィア共和国	TM	トルクメニスタン
BY	ベラルーシ	GW	ギニア・ビサウ	ML	マリ	TR	トルコ
CA	カナダ	HR	クロアチア	MN	モンゴル	TT	トリニダード・トバゴ
CF	中央アフリカ	HU	ハンガリー	MR	モーリタニア	TZ	タンザニア
CG	コンゴ	ID	インドネシア	MW	マラウイ	UA	ウクライナ
CH	スイス	IE	アイルランド	MX	メキシコ	UG	ウガンダ
CI	コートジボアール	IL	イスラエル	MZ	モザンビーク	US	米国
CM	カメルーン	IN	インド	NE	ニジェール	UZ	ウズベキスタン
CN	中国	IS	アイスランド	NL	オランダ	VN	ベトナム
CU	キューバ	IT	イタリア	NO	ノルウェー	YU	ユーゴスラヴィア
CY	キプロス	JP	日本	NZ	ニュージーランド	ZA	南アフリカ共和国
CZ	チェコ	KE	ケニア	PL	ポーランド	ZW	ジンバブエ
DE	ドイツ	KG	キルギスタン	PT	ポルトガル		
DK	デンマーク	KP	北朝鮮	RO	ルーマニア		
		KR	韓国				



## 明 細 書

### 架橋可能なゴム組成物およびその用途

#### 技 術 分 野

本発明は、架橋（加硫）可能なゴム組成物およびその用途に関し、さらに詳しくは、架橋速度が速く生産性に優れ、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性、摩耗性などの特性に優れる、架橋可能なゴム組成物およびその用途に関する。

#### 背 景 技 術

E P D Mなどのエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムは、一般に、耐候性、耐熱性、耐オゾン性に優れており、自動車用工業部品、工業用ゴム製品、電気絶縁材、土木建築用材、ゴム引き布などに用いられている。

従来のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムは、シリコーンゴムなどに比べて耐圧縮永久歪み性が劣るという欠点がある。

この欠点を解決する方法としてイオウ加硫からパーオキサイド架橋にするとの方法は効果的であるが、この方法では、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋をする場合、ゴム表面が架橋しない、あるいは崩壊（デグラデイショ

ン) を起こし耐傷付き性が著しく劣るという欠点がある。この原因は、パーオキサイドが架橋に関与せず、ゴム表面が酸素と触れることで崩壊が進むためであり、酸素を遮断するスチーム架橋、被鉛架橋などで架橋させればゴム表面の耐傷付き性は改良されるものの、生産コストの面で不利となる。

また特開平 4 - 1 5 4 8 5 5 号公報には、H A V で熱空気架橋可能な E P D M / S i H / P t 系化合物からなるオレフィン系ゴム組成物が開示されているが、このゴム組成物の耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性は十分に満足するものではなかった。

また、特開平 7 - 3 3 9 2 4 号公報には、エチレン・プロピレン・ジエン共重合体ゴムに、少なくとも 1 つの反応性基を有するポリシロキサンを添加してなるゴム組成物をパーオキサイド架橋することにより、熱空気架橋が可能で、耐傷付き性に優れたゴムを得ることができることが記載されている。

しかしながら、本願発明者らは、この公報に記載されている発明を追試し、その結果、上記ゴム組成物にパーオキサイドを添加することにより架橋効率は高くなってはいるものの、パーオキサイドラジカルがシロキサンの付加反応を起こさせると同時に、ポリマーラジカルを発生させるため、架橋後のゴム製品表面の耐傷付き性は実用に耐えうるものではないことを確認している。

また、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムからなるゴム組成物の用途によっては、耐圧縮永久歪み性、耐傷付き性のほかに、ゴムとの接着性、金属との接着性あるいは熱老化後に軟化劣化しない、すなわち老化後（環境劣化後）の耐油性

に優れていることが要求される。

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムからなるゴム組成物の用途には、このゴム組成物の成形体を、架橋したゴムや金属などと接着して使用される部品が多くあり、接着性は重要な特性である。たとえば自動車用ウェザーストリップ材は、押出成形された未加硫ゴムをH A VやU H Fなどの連続加硫槽で加硫し、加硫したゴムを切断し、接着することにより通常は製造されている。したがって、接着強度の低いゴムは自動車装着時などに破断してしまうなどの問題が起こることがある。また、建築用ガスケットや自動車ウェザーストリップ材のなかには、異なったゴム組成物を共押出し、架橋反応を利用して接着することにより製造するものもある。

一方、環境劣化後に架橋度が低下するような軟化劣化型のゴムは、架橋度の低下とともに耐油性が悪化する。

ところでまた、ゴム製品は一般に製品硬度別に配合が設計されており、ある製品硬度を得るためにはコストおよび製品物性の兼ね合いで、カーボンブラック、シリカ、タルク、クレー、炭酸カルシウム等が用いられている。ここに列挙した補強材、充填材は、製品硬度を増加させる効果が大なり小なりあるが、いずれもコンパウンド粘度をアップさせるため加工性を損ねてしまう性質を有している。また、上記のような補強剤、充填材は、ゴム製品として重要な物性である伸びをも低下させてしまう性質を有している。

このため、ゴム製品硬度をアップさせる効果があり、しかも、コンパウンド粘度を下げることのできる技術の確立が望まれている。

一方、上記特性のほかにも耐摩耗性に優れることが望まれている。耐摩耗性が求められる理由は、たとえば自動車用ガラスランやワイパーブレードなどはガラスとの摺動部が摩耗し製品寿命が短くなるからである。

また、プレス成形やインジェクション成形する場合には、耐金型汚染性に優れることが要求される。

金型汚染の原因のひとつには、ゴム劣化物や配合物などが金型表面に堆積することにより発生することが知られている。この堆積物が増加すると架橋ゴム製品表面に傷が付き、外観不良となる。このため、金型をまめに洗浄する必要があるが、この洗浄時間が生産コストアップに繋がるという欠点がある。

このような金型汚染対策として、特開平 10-227778 号公報には、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムにシリコーンゴムをブレンドすることにより金型汚染の少ないゴム組成物を提供できることが記載されている。

しかしながら、このゴム組成物は確かに金型汚染が少ないものの、強度特性がやや劣るという欠点がある。強度特性が低下する理由は、有機過酸化物架橋剤を用いた場合、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムの架橋速度がシリコーンゴムの架橋速度に比べて遅く、共架橋性が劣るためと考えられる。

したがって、生産コストに優れる熱空気架橋（HAV、UHF など）で架橋することができ、さらに耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性に優れるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム組成物、

生産コストに優れる熱空気架橋（H A V、U H Fなど）で架橋することができ、さらに耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性、接着性、環境劣化後の耐油性に優れるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム組成物、

生産コストに優れる熱空気架橋（H A V、U H Fなど）で架橋することができ、さらに耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性および耐摩耗性に優れ、しかも流動性に優れるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム組成物、

生産コストに優れる熱空気架橋（H A V、U H Fなど）で架橋することができ、さらに耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性、耐摩耗性に優れ、プレス架橋成形やインジェクション架橋成型する場合には、耐金型汚染性、強度特性に優れるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム組成物の出現が望まれている。

さらにまた、以下のようなゴム組成物および用途の出現が望まれている。

（１）架橋速度が速く生産性に優れ、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、これまでになく耐圧縮永久歪み性に優れ、架橋ゴム成形体を低コストで生産することができる、架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物およびその防振ゴム製品。

（２）架橋速度が速く生産性に優れ、H A V、U H Fなどの熱空気架橋が可能で、耐圧縮永久歪み性に優れ、これまでになく耐圧縮永久歪み性に優れ、しかも、架橋剤ないし加硫剤のブリードにより製品表面が汚染されることがなく製品外観に優れ、また、いわゆる発

ガン性物質と疑われているニトロソアミン系化合物など放出しない、環境に優しい架橋可能なグラスラン用ゴム組成物およびその組成物からなるグラスラン製品。

(3) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱老化性などの特性に優れるホース用架橋ゴム成形体を調製することができる架橋可能な、酸化亜鉛無添加のホース用ゴム組成物、およびその組成物からなる自動車用水系ホース、自動車用ブレーキホースおよび工業用空気ホース、水系ホース、スチームホース等の各種ホース。

(4) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (熱空気加硫槽)、U H F (マイクロ波加硫槽)などの連続架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、耐傷付き性などの特性に優れる、架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物、およびその架橋発泡成形体であるウェザーストリップスポンジ。

(5) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、発泡性、耐汚染性(たとえば金属に対する耐汚染性)、強度特性などの特性に優れる高発泡スポンジ用架橋ゴム発泡成形体を調製することができる、架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物、さらにはその高発泡スポンジ(架橋ゴム発泡成形体)。

(6) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、し

かも、耐圧縮永久歪み性、電気特性、強度特性などの特性に優れる電気・電子部品用架橋ゴム成形体を調製することができる、架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物、さらにはその電気・電子部品たとえば電線被覆材、電気絶縁ゴム部品等の絶縁性の電気・電子部品、半導（電）性の電気・電子部品。

（７）架橋速度が速く生産性に優れ、HAV（ホットエアー加硫槽）、UHF（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐熱老化性、耐圧縮永久歪み性、耐液性（ $\Delta V$ ）、強度特性等に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物および液圧シリンダー部品。

（８）架橋速度が速く生産性に優れ、HAV（ホットエアー加硫槽）、UHF（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、強度特性、耐傷付き性、耐熱老化性、耐圧縮永久歪み性および耐薬品性に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、耐金型汚染性に優れた架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物および密封シールパッキン部品。

（９）ガラス保持力が高く、耐候性、耐クリープ性、および着色性が優れ、更には通年の温度変化に対しても安定して、かつ容易に施工することができる架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物およびこのゴム組成物より形成される建築用ガスケット。

（１０）耐熱性に優れ、良好な弾性を有するポリオレフィン系ロールを得ることができる架橋可能なゴム組成物およびこのゴム組成物から得られるゴムロール。

本発明は、上記のような従来技術に伴う問題を解決しようとする

ものであって、架橋速度が速く生産性に優れ、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性および耐摩耗性などの特性に優れる架橋ゴム成形体を調製できる、架橋可能なゴム組成物、およびその組成物からなる自動車用ウェザーストリップ、ホース、防振ゴム、ベルト、シール材、発泡体、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、家庭用ゴム製品を提供することを目的としている。

また、本発明の他の目的は、以下の通りである。

（１）架橋速度が速く生産性に優れ、熱空気架橋（H A V、U H F など）で架橋することが可能であり、しかも耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性、接着性および劣化後の耐油性に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、架橋可能なゴム組成物およびその成形体からなる用途を提供すること。

（２）架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、H A V、U H F などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性などの特性に優れる架橋ゴム成形体（発泡体も含む）を調製することができる、流動性に優れた架橋可能なゴム組成物およびその用途を提供すること。

（３）架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、熱空気架橋（H A V、U H F など）で架橋することが可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性、耐摩耗性などの特性に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、耐金型汚染性に優れた架橋可能なゴム組成物およびその用途を提供すること。



(4) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、これまでにない耐圧縮永久歪み性に優れる架橋ゴム成形体を低コストで生産することができる、架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物およびその防振ゴム製品を提供すること。

(5) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V、U H Fなどの熱空気架橋が可能で、耐圧縮永久歪み性に優れ、これまでにない耐圧縮永久歪み性に優れ、しかも、架橋剤ないし加硫剤のブリードにより製品表面が汚染されることがなく製品外観に優れ、また、いわゆる発ガン性物質と疑われているニトロソアミン系化合物など放出しない、環境に優しい架橋可能なグラスラン用ゴム組成物およびその組成物からなるグラスラン製品を提供すること。

(6) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱老化性などの特性に優れるホース用架橋ゴム成形体を調製することができる架橋可能な、酸化亜鉛無添加のホース用ゴム組成物、およびその組成物からなる自動車用水系ホース、自動車用ブレーキホースおよび工業用空気ホース、水系ホース、スチームホース等の各種ホースを提供すること。

(7) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (熱空気加硫槽)、U H F (マイクロ波加硫槽)などの連続架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、耐傷付き性などの特性に優れるウェザーストリップスポンジを調製することができる、架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物、およびその架橋発泡成形体であるウェ

ザーストリップスポンジを提供すること。

(8) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、発泡性、耐汚染性(たとえば金属に対する耐汚染性)、強度特性などの特性に優れる高発泡スポンジ用架橋ゴム発泡成形体を調製することができる、架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物、さらにはその高発泡スポンジ(架橋ゴム発泡成形体)を提供すること。

(9) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、電気特性、強度特性などの特性に優れる電気・電子部品用架橋ゴム成形体を調製することができる、架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物、さらにはその電気・電子部品たとえば電線被覆材、電気絶縁ゴム部品等の絶縁性の電気・電子部品、半導(電)性の電気・電子部品を提供すること。

(10) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐熱老化性、耐圧縮永久歪み性、耐液性( $\Delta V$ )、強度特性等に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物およびその組成物からなる液圧シリンダー部品を提供すること。

(11) 架橋速度が速く生産性に優れ、H A V (ホットエアー加硫槽)、U H F (極超短波電磁波)などの熱空気架橋が可能であり、しかも、強度特性、耐傷付き性、耐熱老化性、耐圧縮永久歪み性、耐

薬品性に優れる架橋ゴム成形体を調製することができる、耐金型汚染性に優れた架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物およびその組成物からなる密封シールパッキン部品を提供すること。

(12) ガラス保持力が高く、耐候性、耐クリープ性、および着色性が優れ、更には通年の温度変化に対しても安定して、かつ容易に施工することができる架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物、およびこのゴム組成物より形成される建築用ガスケットを提供すること。

(13) 耐熱性に優れ、良好な弾性を有するポリオレフィン系ロールを得ることができる架橋可能なゴム組成物、およびこのゴム組成物から得られるゴムロールを提供すること。

### 発明の開示

本発明に係る第1の架橋可能なゴム組成物は、

シート状に成形した後熱空気（熱風）架橋して得られる架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であることを特徴としている。

また、本発明に係る第1の架橋可能なゴム組成物においては、室温下に、架橋ゴムシートをキシレン10g中に48時間浸漬した後の残液の濁度（以下、単に「濁度」という。）が、2ppm以下であることが好ましい。さらに、この濁度と上記CSとが、下式

$$\text{濁度 (ppm)} \leq 10 - 0.125 \times \text{CS (\%)} \quad (1)$$

の関係を満たすことが、特に好ましい。

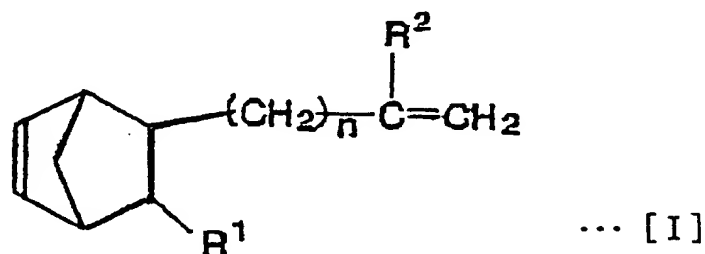
また、上記 C S は 50 % 以下であることが好ましく、より好ましくは 40 % 以下、さらに好ましくは 30 % 以下、特に好ましくは 20 % である。

本発明に係る第 2 の架橋可能なゴム組成物は、

非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、

S i H 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ S i H 基含有化合物 (B) と

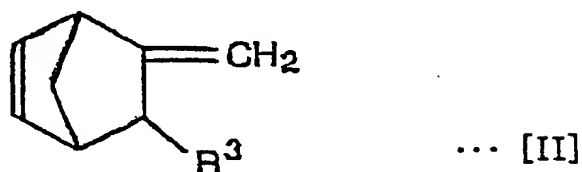
からなることを特徴としている。



[式中、n は 0 ないし 10 の整数であり、

R¹ は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、

R² は水素原子または炭素原子数 1 ~ 5 のアルキル基である。]



[式中、 $R^3$ は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基である。]

本発明に係る第2の架橋可能なゴム組成物は、さらに触媒(E)、または触媒(E)と反応抑制剤(F)を含有していてもよい。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、

(i) エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が40/60～95/5の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が0.5～50の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3～1.0 dl/gの範囲にある。

中でも、前記(i)、(ii)および(iii)の物性の他に、

(iv) GPCにより測定した分子量分布( $M_w/M_n$ )が3～50であり、

(v) 該エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A) 100 gに対し、ジクミルパーオキサイド0.01モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網目鎖密度( $\nu$ )が $1.5 \times 10^{20}$ 個/cm<sup>3</sup>以上であるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)が好ましく、中でも、前記(i)、(ii)、(iii)、(iv)および(v)の物性の他に、

(vi) 100℃でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力 $0.4 \times 10^6$  dyn/cm<sup>2</sup>を示すときのずり速度 $\dot{\gamma}$ とずり応力2

・  $4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$ を示すときのずり速度  $\gamma_2$  との比  $\gamma_2 / \gamma_1$  と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [III]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log} (\gamma_2 / \gamma_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [III]

で表わされる関係を満足する

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) がより好ましい。

前記 (i) ~ (vi) の物性を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、たとえば下記化合物 (J) および (K) を主成分として含有する触媒を用い、重合温度  $30 \sim 60^\circ\text{C}$ 、重合圧力  $4 \sim 12 \text{ kgf/cm}^2$ 、非共役ポリエンとエチレンとの供給量のモル比 (非共役ポリエン/エチレン)  $0.01 \sim 0.2$  の条件で、エチレン、 $\alpha$ -オレフィンおよび前記一般式 [I] または [II] で表わされるノルボルネン化合物を共重合することにより得られる。

(J)  $\text{VO}(\text{OR})_n\text{X}_{3-n}$  (式中、R は炭化水素基であり、X はハロゲン原子であり、n は 0 または 1 ~ 3 の整数である) で表わされる可溶性バナジウム化合物、または  $\text{VX}_4$  (X はハロゲン原子である) で表わされるバナジウム化合物。

(K)  $\text{R}'_m\text{AlX}'_{3-m}$  (R' は炭化水素基であり、X' はハロゲン原子であり、m は 1 ~ 3 の整数である) で表わされる有機アルミニウム化合物。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) のソックスレー抽出 (溶媒: 沸騰キシレン、抽出時間

： 3 時間、メッシュ： 3 2 5）後の不溶解分が 1 % 以下であることが好ましい。

前記触媒（E）としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る第 2 の架橋可能なゴム組成物は、シート状に成形した後熱空気（熱風）架橋して得られる架橋ゴムシートが、HB の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で 22 時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が通常 70 % 以下、好ましくは 50 % 以下、より好ましくは 40 % 以下、さらに好ましくは 30 % 以下、特に好ましくは 20 % 以下であることが好ましい。特に 160℃での架橋速度（ $t_c(90)$ ）が 15 分以下であることが好ましい。

本発明に係る第 1 または第 2 の架橋可能なゴム組成物は、

自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジまたは他の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA 機器用ロール、工業用ロール；家庭用ゴム製品などの製造の際に好適に用いられる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）を含有してなる、本発明に係る第 2 の架橋可能なゴム組成物は、常温での架橋が可能であり、また、反応射出成形（RIM）用に好適に用いられる。さらに、熱可塑性エラストマーの製造の際に

用いることができるし、エンジニアリングプラスチックの改質にも用いることができる。

本発明に係る自動車用ウェザーストリップ、ホース（自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース）、防振ゴム（自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム）、ベルト（伝動ベルト、搬送用ベルト）、シール材（自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材）、発泡体（自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジおよび他の発泡体）、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品、OA機器用ロール、工業用ロールおよび家庭用ゴム製品は、本発明に係る第1または第2の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る第2の架橋可能なゴム組成物は、架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、HAV、UHFなどの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性および耐摩耗性などの特性に優れる架橋ゴム成形体を提供することができる。

本発明に係る第2の架橋可能なゴム組成物またはその架橋ゴム成形体は、上記のような効果を有するので、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース等のホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム等の防振ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト等のベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材等のシール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジ、その他

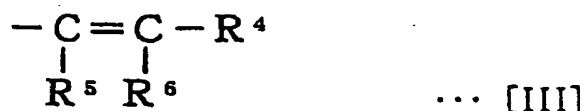


ホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジ、インシュレーションパイプ等の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテックス製品、ゴルフボール等の家庭用品；プラスチック改質用、熱可塑性エラストマー用、エンジニアリングプラスチック改質用などの用途に広く用いられる。

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物は、

非共役ポリエンである前記一般式〔I〕または〔II〕で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物（1）から導かれる構成単位と、下記一般式〔III〕で表わされる基を含有する非共役ポリエン化合物（2）から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A1）と、

前記SiH基含有化合物（B）とからなることを特徴としている。



〔式中、 $\text{R}^4$  は炭素原子数1～10のアルキル基であり、

$\text{R}^5$  および  $\text{R}^6$  は、それぞれ独立に、水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基である。〕

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A1）およびS

i H基含有化合物 (B) の他に、必要に応じて触媒 (E)、さらには反応抑制剤 (F) を含有させることができる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) は、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 40 / 60 ~ 95 / 5 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 0.5 ~ 50 の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ~ 1.0 dl / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である。

中でも、前記 (i)、(ii)、(iii) および (iv) の物性の他に、  
(v) GPCにより測定した分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) が 3 ~ 100 であり、

(vi) 該エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) 100 g に対し、ジクミルパーオキサイド 0.01 モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) が  $1.5 \times 10^{20}$  個 /  $\text{cm}^3$  以上である

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム

(A1) が好ましく、中でも、前記 (i)、(ii)、(iii)、(iv)、  
(v) および (vi) の物性の他に、

(vii) 100℃でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力  $0.4 \times 10^6 \text{ dyn} / \text{cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_1$  とずり応力  $2.4 \times 10^6 \text{ dyn} / \text{cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_2$  との比  $\gamma_2$

／ $r_1$  と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [IV]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log} (r_2 / r_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [IV]

で表わされる関係を満足するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) がより好ましい。

前記 (i) ~ (vii) の物性を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) は、たとえば前記化合物 (J) および (K) を主成分として含有する触媒を用い、重合温度 30 ~ 60 °C、重合圧力 4 ~ 12 kgf / cm<sup>2</sup>、非共役ポリエンとエチレンとの供給量のモル比 (非共役ポリエン / エチレン) 0.01 ~ 0.2 の条件で、エチレン、 $\alpha$ -オレフィン、前記一般式 [I] または [II] で表わされるノルボルネン化合物、および前記一般式 [III] で表わされる基を含有する非共役ポリエンを共重合することにより得られる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) のソックスレー抽出 (溶媒: 沸騰キシレン、抽出時間: 3 時間、メッシュ: 325) 後の不溶解分が 1 % 以下であることが好ましい。

前記触媒 (E) としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る第 3 の架橋可能なゴム組成物としては、ゴム組成物をシート状に成形した後熱空気 (熱風) 架橋して得られる架橋ゴムシートが、HB の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150 °C で 22 時間熱処理後の圧縮永久歪み (CS) が通常 70 % 以下、好ましくは 50 % 以下、より好ましくは 40 % 以下、

さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、150℃で72時間熱老化後の引張強さ保持率が50～300%であることが好ましい。

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物は、

自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジまたは他の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；家庭用ゴム製品；土木建築用止水シート；建材シーラントなどの製造の際に好適に用いられる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A1）を含有してなる、本発明に係る第3に係る架橋可能なゴム組成物は、常温での架橋が可能で室温架橋ゴム（RTV）用に好適に用いることができるし、また、反応射出成形（RIM）用に好適に用いられる。また、水架橋ゴムの原料に用いることができる。さらに、熱可塑性エラストマーの製造の際に用いることができるし、熱可塑性樹脂の改質やエンジニアリングプラスチックの改質にも用いることができる。

本発明に係る自動車用ウェザーストリップ、ホース（自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース）、防振ゴム（自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム）、ベルト（伝動ベルト、搬送用ベルト）、シール材（自動車用カップ・

シール材、産業機械用シール材)、発泡体(自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジおよび他の発泡体)、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品、OA機器用ロール、工業用ロール、土木建築用止水シートおよび家庭用ゴム製品は、本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物からなっているもよい。

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物は、架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、H A V、U H Fなどの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性、接着性、劣化後の耐油性および耐摩耗性などの特性に優れた架橋ゴム成形体(発泡体も含む)を提供することができる。

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物またはその架橋ゴム成形体は、上記のような効果を有するので、自動車用ウェザーストリップ;自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース等のホース;自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム等の防振ゴム;伝動ベルト、搬送用ベルト等のベルト;自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材等のシール材;自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジ、その他ホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジ、インシュレーションパイプ等の発泡体;被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品;OA機器用ロール、工業用ロール;建築用止水シート、土木用止水シート;雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテックス製品、ゴルフボール等の家庭用品;プラスチック改質用、熱可塑性エラストマー用、水架橋ゴム用、熱可塑性樹脂改

質剤、エンジニアリングプラスチック改質用などの用途に広く用いられる。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物は、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、ポリオレフィン樹脂(D1)と、前記SiH基含有化合物(B)とからなるゴム組成物であり、

該ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)中に、ポリオレフィン樹脂(D1)を溶解状態でミクロ分散させたブレンド物であり、

ポリオレフィン樹脂(D1)の平均分散粒子径が $2\mu\text{m}$ 以下であり、

かつ、ポリオレフィン樹脂(D1)とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)とのブレンド重量比 $[(D1)/(A)]$ が $5/95 \sim 50/50$ であることを特徴としている。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物としては、ポリオレフィン樹脂(D1)がエチレン単独重合体または結晶性エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体であるゴム組成物が好ましい。また、次のゴム組成物も好ましい。

すなわち、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、

炭素原子数3~8の $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性 $\alpha$ -オレフィン単独重合体、またはこれらの $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性 $\alpha$ -

オレフィン共重合体であるポリオレフィン樹脂（D 1）と含有してなるゴム組成物であり、

該ゴム組成物は、

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）中に、ポリオレフィン樹脂（D 1）を熔融状態でミクロ分散させたブレンド物であり、

ポリオレフィン樹脂（D 1）の平均分散粒子径が $2\text{ }\mu\text{m}$ 以下であり、

ポリオレフィン樹脂（D 1）とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）とのブレンド重量比〔（D 1）／（A）〕が $5/95 \sim 50/50$ であり、かつ、

該ゴム組成物の硬さ（J I S K 6 3 0 1で規定されているA硬度＝Y）とポリオレフィン樹脂（D 1）の配合量（X）とが、

$$Y = (0.5 \pm 0.2) X + a$$

〔式中、Xは、ポリオレフィン樹脂（D 1）の配合量（単位：重量部、成分（A）と（D 1）との合計量は100重量部）であり、aは、ポリオレフィン樹脂（D 1）配合による硬度アップ分をこのゴム組成物の硬度から引いた硬度である〕の関係を満たす架橋可能なゴム組成物。ポリオレフィン樹脂（D 1）の分散粒子のアスペクト比が5以下であることがより好ましい。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）、ポリオレフィン樹脂（D 1）およびSiH基含有化合物（B）の他に、必要に応じて触媒（E）、さらには反応抑制剤（F）を含有させること

ができる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、

- (i) エチレンと炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が40/60~95/5、好ましくは50/50~90/10、さらに好ましくは55/45~85/15、特に好ましくは60/40~80/20の範囲にあり、
  - (ii) ヨウ素価が0.5~50、好ましくは0.8~40、さらに好ましくは1~30、特に好ましくは1.5~25(g/100g)の範囲にあり、
  - (iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3~10dl/g、好ましくは0.5~8dl/g、さらに好ましくは0.7~6dl/g、特に好ましくは0.8~5dl/gの範囲にあり、
  - (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上、好ましくは7以上、さらに好ましくは9以上、特に好ましくは10以上である。
- 中でも、前記(i)、(ii)、(iii)および(iv)の物性の他に、
- (v) GPCにより測定した分子量分布(Mw/Mn)が2~200、好ましくは2.5~150、さらに好ましくは3~120、特に好ましくは5~100であり、
  - (vi) 該エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)100gに対し、ジクミルパーオキサイド0.01モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網



目鎖密度 ( $\nu$ ) が  $1.5 \times 10^{20}$  個 /  $\text{cm}^3$  以上である

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム

(A) が好ましく、中でも、前記 (i)、(ii)、(iii)、(iv)、(v) および (vi) の物性の他に、

(vii)  $100^\circ\text{C}$  でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力  $0.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_1$  とずり応力  $2.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_2$  との比  $\gamma_2/\gamma_1$  と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [III]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log}(\gamma_2/\gamma_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [III]

で表わされる関係を満足する

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム

(A) がより好ましい。

前記 (i) ~ (vii) の物性を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、たとえば前述した共重合により得ることができる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) のソックスレー抽出 (溶媒: 沸騰キシレン、抽出時間: 3 時間、メッシュ: 325) 後の不溶解分が 1% 以下であることが好ましい。

前記触媒 (E) としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る第 4 の架橋可能なゴム組成物としては、ゴム組成物をシート状に成形した後熱空気 (熱風) 架橋して得られる架橋ゴムシートが、HB の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、

かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が通常70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であることが好ましい。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物は、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジまたは他の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；家庭用ゴム製品；土木建築用止水シート；建材シーラントなどの製造の際に好適に用いられる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）を含有してなる、本発明に係る第4に係る架橋可能なゴム組成物は、常温での架橋が可能で室温架橋ゴム（RTV）用に好適に用いることができるし、また、反応射出成形（RIM）用に好適に用いられる。また、水架橋ゴムの原料に用いることができる。さらに、熱可塑性エラストマーの製造の際に用いることができるし、熱可塑性樹脂の改質やエンジニアリングプラスチックの改質にも用いることができる。

本発明に係る自動車用ウェザーストリップ、ホース（自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース）、防振ゴム（自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム）、ベ

ルト（伝動ベルト、搬送用ベルト）、シール材（自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材）、発泡体（自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジおよび他の発泡体）、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品、OA機器用ロール、工業用ロール、土木建築用止水シートおよび家庭用ゴム製品は、本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物からなっているもよい。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物は、流動性に優れ、架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、HAV、UHFなどの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性などの特性に優れる架橋ゴム成形体（発泡体も含む）を提供することができる。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物またはその架橋ゴム成形体は、上記のような効果を有するので、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース等のホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム等の防振ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト等のベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材等のシール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジ、その他ホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジ、インシュレーションパイプ等の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；建築用止水シート、土木用止水シート；雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテックス製品、ゴルフボール等の家庭用品；プラスチック

改質用、熱可塑性エラストマー用、水架橋ゴム用、熱可塑性樹脂改質剤、エンジニアリングプラスチック改質用などの用途に広く用いられる。

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)および前記SiH基含有化合物(B)の他に、アルケニル基含有オルガノポリシロキサン(C)を含有してなることを特徴としている。

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)、アルケニル基含有オルガノポリシロキサン(C)、およびSiH基含有化合物(B)の他に、必要に応じて、触媒(E)、さらには反応抑制剤(F)を含有させることができる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、

- (i) エチレンと炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が40/60~95/5、好ましくは50/50~90/10、さらに好ましくは55/45~85/15、特に好ましくは60/40~80/20の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が0.5~50、好ましくは0.8~40、さらに好ましくは1~30、特に好ましくは1.5~25(g/100g)の範囲にあり、
- (iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.

3 ~ 10 dl / g、好ましくは 0.5 ~ 8 dl / g、さらに好ましくは 0.7 ~ 6 dl / g、特に好ましくは 0.8 ~ 5 dl / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である。

中でも、前記 (i)、(ii)、(iii) および (iv) の物性の他に、

(v) GPC により測定した分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) が 2 ~ 200、好ましくは 2.5 ~ 150、さらに好ましくは 3 ~ 120、より好ましくは 3 ~ 100、特に好ましくは 5 ~ 100 であり、

(vi) 該エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) 100 g に対し、ジクミルパーオキサイド 0.01 モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) が  $1.5 \times 10^{20}$  個 /  $\text{cm}^3$  以上である

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が好ましい。中でも、前記 (i)、(ii)、(iii)、(iv)、(v) および (vi) の物性の他に、

(vii) 100℃でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力  $0.4 \times 10^6 \text{ dyn} / \text{cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_1$  とずり応力  $2.4 \times 10^6 \text{ dyn} / \text{cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_2$  との比  $\gamma_2 / \gamma_1$  と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [III]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log} (\gamma_2 / \gamma_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [III]

で表わされる関係を満足するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) がより好ましい。

前記 (i) ~ (vii) の物性を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、たとえば前述した共重合により得ることができる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) のソックスレー抽出 (溶媒：沸騰キシレン、抽出時間：3 時間、メッシュ：3 2 5) 後の不溶解分が 1 % 以下であることが好ましい。

前記触媒 (E) としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る第 5 の架橋可能なゴム組成物としては、ゴム組成物をシート状に成形した後熱空気 (熱風) 架橋して得られる架橋ゴムシートが、HB の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み (CS) が通常70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、150℃で72時間熱老化後の引張強さ保持率が50~300%であることが好ましい。

本発明に係る第 5 の架橋可能なゴム組成物は、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジまたは他の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；家庭用ゴム製品；土木建築用止水シート；建材シーラントなどの製

造の際に好適に用いられる。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）を含有してなる、本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、常温での架橋が可能で室温架橋ゴム（RTV）用に好適に用いることができるし、また、反応射出成形（RIM）用に好適に用いられる。また、水架橋ゴムの原料に用いることができる。さらに、熱可塑性エラストマーの製造の際に用いることができるし、熱可塑性樹脂の改質やエンジニアリングプラスチックの改質にも用いることができる。

本発明に係る自動車用ウェザーストリップ、ホース（自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース）、防振ゴム（自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム）、ベルト（伝動ベルト、搬送用ベルト）、シール材（自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材）、発泡体（自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジおよび他の発泡体）、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品、OA機器用ロール、工業用ロール、土木建築用止水シートおよび家庭用ゴム製品は、本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物からなっているもよい。

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、架橋速度が速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れ、HAV、UHFなどの熱空気架橋が可能で耐金型汚染性に優れ、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性、耐摩耗性などの特性に優れる架橋ゴム成形体を提供することができる。

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物またはその架橋ゴム成形体は、上記のような効果を有するので、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース等のホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム等の防振ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト等のベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材等のシール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジ、その他ホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジ、インシュレーションパイプ等の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；建築用止水シート、土木用止水シート；雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテックス製品、ゴルフボール等の家庭用品；プラスチック改質用、熱可塑性エラストマー用、水架橋ゴム用、熱可塑性樹脂改質剤、エンジニアリングプラスチック改質用などの用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物およびグラスラン用ゴム組成物は、

シート状とした後熱空気（熱風）架橋して得られる熱空気（熱風）架橋ゴムシートが、

HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、かつ、



シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートが、

引張強度が  $5 \sim 16 \text{ MPa}$  であり、 $150^\circ\text{C}$  で 22 時間熱処理後の圧縮永久歪み (CS) が 70 % 以下、好ましくは 50 % 以下、より好ましくは 40 % 以下、さらに好ましくは 30 % 以下、特に好ましくは 20 % 以下であることを特徴としている。

前記の物性を有する、本発明に係る架橋可能な防振ゴム用およびグラスラン用ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、前記 SiH 基含有化合物 (B) とを含有してなり、該ゴム組成物の  $160^\circ\text{C}$  での架橋速度 ( $t_{(90)}$ ) が 15 分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、

- (i) エチレンと炭素原子数  $3 \sim 20$  の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン/ $\alpha$ -オレフィン) が  $60/40 \sim 80/20$ 、好ましくは  $65/35 \sim 80/20$ 、より好ましくは  $65/35 \sim 75/25$  の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が  $1 \sim 30$ 、好ましくは  $1 \sim 25$ 、さらに好ましくは  $2 \sim 20$ 、特に好ましくは  $3 \sim 18$ 、最も好ましくは  $4 \sim 15$  ( $\text{g}/100 \text{ g}$ ) の範囲にあり、
- (iii)  $135^\circ\text{C}$  のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が  $1.5 \sim 3.5 \text{ dl/g}$ 、好ましくは  $1.5 \sim 3.0 \text{ dl/g}$  の範囲にあり、
- (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上、好ましくは

7以上、さらに好ましくは9以上、特に好ましくは10以上である。

これらのゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびSiH基含有化合物（B）の他に、必要に応じて触媒（E）、さらには反応抑制剤（F）を含有させることができる。

前記触媒（E）としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る防振ゴム製品は、上記の、本発明に係る架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物からなることを特徴としている。

また、本発明に係るグラスラン製品は、上記の、本発明に係る架橋可能なグラスラン用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物は、振動の伝達を遮断あるいは軽減するために、機械、家電、土木建材、自動車、車両などに広く使用されている防振ゴム製品の製造の際に好適に用いられる。

また、本発明に係る架橋可能なグラスラン用ゴム組成物は、ウエザーストリップ等のグラスラン製品の製造の際に好適に用いられる。

本発明に係る架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、HAV（ホットエアー加硫槽）、UHF（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、加硫剤（架橋剤）が製品表面にブリードしないことにより製品外観に優れるとともに、耐圧縮永久歪み性と耐熱老化性に優れ、また、いわゆる発ガン性物質と疑われているニトロソアミン系化合物などを放出しない、環境に優しい架橋ゴム成形体を低コストで生産することができる。

また本発明に係るグラスラン用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、H A V、U H Fなどの熱空気架橋が可能で、耐圧縮永久歪み性に優れ、しかも、加硫剤（架橋剤）が製品表面にブリードしないことにより製品外観に優れ、また発ガン性物質と疑われているニトロソアミン系化合物などを放出しない、環境に優しい架橋ゴム成形体を低コストで生産することができる。

本発明に係る架橋可能なホース用ゴム組成物は、

シート状とした後熱空気架橋して得られる熱空気架橋ゴムシートが、

H Bの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（C S）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートが、

体積固有抵抗値（23℃）が $10^3 \sim 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$ の範囲にあり、引張強度が5～30 MP aの範囲にあり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（C S）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であることを特徴としている。

前記ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）と、前記S i H基含有化合物（B）とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度（t.（

90) ) が 15 分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、

- (i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 60 / 40 ~ 80 / 20、好ましくは 65 / 35 ~ 80 / 20、特に好ましくは 60 / 40 ~ 75 / 25 の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が 1 ~ 30、好ましくは 1 ~ 25、さらに好ましくは 2 ~ 20、特に好ましくは 3 ~ 18、最も好ましくは 4 ~ 15 (g / 100 g) の範囲にあり、
- (iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ~ 5.0 dl / g、好ましくは 1.0 ~ 4.0 dl / g、さらに好ましくは 1.2 ~ 3.5 dl / g、特に好ましくは 1.5 ~ 3.0 dl / g の範囲にあり、
- (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上、好ましくは 7 以上、さらに好ましくは 9 以上、特に好ましくは 10 以上である。

本発明に係る架橋可能なホース用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) および Si H 基含有化合物 (B) の他に、必要に応じて触媒 (E)、さらには反応抑制剤 (F) を含有させることができる。

前記触媒 (E) としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係るホースは、上記の、本発明に係る架橋可能なホース用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能なホース用ゴム組成物は、自動車用水系ホース、自動車用ブレーキホースおよび工業用ホース（スチーム用、水用、空気用など）の製造の際に好適に用いられる。

本発明に係る架橋可能なホース用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、熱空気加硫槽、マイクロ波加硫槽、流動床加硫槽などの酸素が存在する熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、電気特性、強度特性、架橋速度などの特性に優れるホース用架橋ゴム成形体を提供することができる。また、このホース用ゴム組成物に酸化亜鉛を添加しなくても、上記特性に優れるホース用架橋ゴム成形体を調製することができる。

本発明に係るホースは、上記のような効果を有する架橋ゴム成形体からなるので、自動車用ブレーキホース、自動車用水系ホースの自動車用ホース、スチーム用ホース、水系ホース、空気用ホース等の工業用ホースなどの各種ホースの用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物は、

シート状に成形した後熱空気（熱風）架橋して得られる架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、比重が0.1～0.8の範囲にあり、かつ、吸水率が50%以下であることを特徴としている。

前記ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）と、前記SiH基含有化合物（B）とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度（ $t_c$ （90））が15分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、

- （i）エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）が60/40～90/10、好ましくは65/35～90/10、特に好ましくは65/35～85/15の範囲にあり、
- （ii）ヨウ素価が1～30、好ましくは1～25、特に好ましくは2～20（g/100g）の範囲にあり、
- （iii）135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3～5dl/g、好ましくは0.3～4.5dl/g、特に好ましくは0.5～4dl/gの範囲にあり、
- （iv）動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が3以上、好ましくは3.5以上、特に好ましくは4以上である。

本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）、SiH基含有化合物（B）の他に、必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）、さらには発泡剤（G）を含有させることができる。

前記触媒（E）としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成

物は、自動車用工業品の一つであるウェザーストリップスポンジの製造の際に好適に用いられる。

本発明に係るウェザーストリップスポンジは、上記の、本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物は、架橋速度が速く、架橋ゴム成形体（スポンジ）の生産性に優れ、H A V、U H Fなどの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、強度特性、耐熱性、耐候性および耐摩耗性などの特性に優れる架橋ゴム成形体（スポンジ）を提供することができる。

本発明に係る架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物から得られる架橋ゴム成形体は、上記のような効果を有するので、ウェザーストリップスポンジに広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物は、

シート状にした後熱空気（熱風）架橋して得られる架橋ゴムシートが、

H B の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（C S）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、かつ、発泡体の比重が0.01～0.5の範囲にあり、吸水率が1～500%の範囲にあり、アスカーC硬度が0.1～50の範囲にあることを特徴としている。

前記ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）と、SiH基含有化合物（B）とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度（ $t_c(90)$ ）が15分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、

- （i）エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）が60/40～90/10、好ましくは65/35～90/10、さらに好ましくは65/35～85/15、特に好ましくは65/35～80/20の範囲にあり、
- （ii）ヨウ素価が1～30、好ましくは1～25、さらに好ましくは2～20、特に好ましくは3～18、最も好ましくは4～15（g/100g）の範囲にあり、
- （iii）135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3～4dl/g、好ましくは0.3～3.5dl/g、さらに好ましくは0.3～3dl/g、特に好ましくは0.3～2.8dl/gの範囲にあり、
- （iv）動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上である。

本発明に係る高発泡スポンジ用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびSiH基含有化合物（B）の他に、必要に応じて触媒（E）、さらには反応抑制剤（F）、発泡剤（G）、ポリオレフィン樹脂（D2）、発泡助剤（H）を含有させることができる。



前記触媒（E）としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る高発泡スポンジは、上記の、本発明に係る架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る高発泡スポンジ用ゴム組成物は、断熱スポンジ、クッションスポンジ、シールスポンジ、難燃スポンジなどの高発泡スポンジの製造の際に好適に用いられる。

本発明に係る架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、発泡性、耐汚染性、強度特性、架橋速度などの特性に優れる高発泡スポンジ用架橋ゴム発泡成形体を提供することができる。

本発明に係る高発泡スポンジは、上記のような効果を有する架橋ゴム発泡成形体からなるので、自動車用シールスポンジ、家電用シールスポンジ、土木建築用シールスポンジ、自動車用断熱スポンジ、家電用断熱スポンジ、土木建築用断熱スポンジ、自動車用クッションスポンジ、家電用クッションスポンジ、土木建築用クッションスポンジ、自動車用難燃スポンジ、家電用難燃スポンジ、土木建築用難燃スポンジ、自動車用プロテクトスポンジ、家電用プロテクトスポンジ、土木建築用プロテクトスポンジの用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物は、

シート状とした後熱空気（熱風）架橋して得られる熱空気（熱風）架橋ゴムシートが、

H B の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み(CS)が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートが、

体積固有抵抗値(23℃)が $10^7 \sim 10^{17} \Omega \cdot \text{cm}$ の範囲にあり、引張強度が3~20MPaの範囲にあり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み(CS)が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であることを特徴としている。

前記ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、SiH基含有化合物(B)とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度( $t_c(90)$ )が15分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、

- (i) エチレンと炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が60/40~90/10、好ましくは65/35~90/10、さらに好ましくは65/35~85/15、特に好ましくは65/35~80/20の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が1~30、好ましくは1~25、さらに好ましくは2~20、特に好ましくは3~18、最も好ましくは4~15

- (g / 100 g) の範囲にあり、
- (iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ~ 2.5 dl / g、好ましくは 0.3 ~ 2.4 dl / g、さらに好ましくは 0.3 ~ 2.3 dl / g、特に好ましくは 0.3 ~ 2.2 dl / g の範囲にあり、
- (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である。

本発明に係る架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) および Si H 基含有化合物 (B) の他に、必要に応じて触媒 (E)、さらには反応抑制剤 (F) を含有させることができる。

前記触媒 (E) としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る電気・電子部品は、上記の、本発明に係る架橋可能な電気・電子部品ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物は、電線被覆材、電気絶縁部品等の絶縁性の電気・電子部品、および半導電性の電気・電子部品の製造の際に好適に用いられる。

本発明に係る架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、HAV (ホットエアー加硫槽)、UHF (極超短波電磁波) などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐圧縮永久歪み性、電気特性、強度特性、架橋速度などの特性に優れる電気・電子部品用架橋ゴム成形体 (発泡体も含む) を提供することができる。

本発明に係る電気・電子部品は、上記のような効果を有する架橋ゴム成形体からなるので、電力ケーブル、キャブタイヤコード、船

用電線、電気絶縁ゴムテープ、ゴムモールドストレスコーン、電線ジョイント部品等の電線被覆材、アノードキャップ、ウェッジ等の家庭用電気絶縁ゴム部品、プラグキャップ、グロメット、イグニションケーブル、ランプソケットカバー等の自動車用電気絶縁部品、端子カバーなどの絶縁性の電気・電子部品、および半導電性の電気・電子部品の用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物は、シート状とした後熱空気（熱風）架橋して得られる熱空気（熱風）架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートが、

- (1) 150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、
  - (2) 150℃で70時間DOT-3ブレーキ液に浸漬させた後の体積変化率（ $\Delta V$ ）が-10～+50%であり、
  - (3) 150℃で70時間熱老化後の引張強さ保持率が50～150%、伸び保持率が50%以上であり、
  - (4) 常態物性の引張強度が3～25MPaである
- ことを特徴としている。

前記の物性を有する、本発明に係る架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリ

エンランダム共重合体ゴム（A）と、前記SiH基含有化合物（B）とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度（t<sub>90</sub>）が15分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、

- (i) エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）が50/50～75/25、好ましくは55/45～75/25、さらに好ましくは60/40～75/25の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が1～30、好ましくは1～25、さらに好ましくは1～20、特に好ましくは1～18（g/100g）の範囲にあり、
- (iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3～2.5 dl/g、好ましくは0.5～2.4 dl/g、さらに好ましくは0.5～2.3 dl/g、特に好ましくは0.5～2.2 dl/gの範囲にあり、
- (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上、好ましくは7以上、さらに好ましくは9以上、特に好ましくは10以上である。

このゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびSiH基含有化合物（B）の他に、必要に応じて触媒（E）、さらには反応抑制剤（F）を含有させることができる。

前記触媒（E）としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る液圧シリンダー部品は、上記の、本発明に係る架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物は、自動車用液圧ブレーキシステムおよび液圧クラッチシステムのアスターシリンダー、ホイールシリンダー中のゴムカップ、およびディスクブレーキシステムのディスクシール等の製造の際に好適に用いられる。

本発明に係る架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、H A V（ホットエアー加硫槽）、U H F（極超短波電磁波）などの熱空気架橋が可能であり、しかも、耐傷付き性、耐圧縮永久歪み性、耐熱老化性、耐液性、強度特性などの特性に優れる液圧シリンダー部品用架橋ゴム成形体（発泡体も含む）を提供することができる。

本発明に係る液圧シリンダー部品は、上記のような効果を有する架橋ゴム成形体からなるので、自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材などの用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物は、

シート状とした後熱空気（熱風）架橋して得られる熱空気（熱風）架橋ゴムシートが、H Bの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートが、

- (1) 150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み(CS)が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下であり、
- (2) 120℃で70時間エチレングリコール溶液に浸漬させた後の体積変化率( $\Delta V$ )が-20~+20%であり、
- (3) 120℃で70時間熱老化後の引張強さ保持率が50~150%、伸び保持率が50%以上、硬さ変化が0~+50ポイントであり、
- (4) 常態物性の引張強度が3~20MPaであり、
- (5) 金型汚染試験での汚染までのショット数が30回以上であることを特徴としている。

前記の物性を有する、本発明に係る架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物は、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、SiH基含有化合物(B)とを含有してなり、該ゴム組成物の160℃での架橋速度( $t_c(90)$ )が15分以下である。

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、

- (i) エチレンと炭素原子数3~20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が60/40~85/15、好ましくは65/35~85/15、さらに好ましくは65/35~80/20の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が0.5~30、好ましくは1~25、さらに好ましくは2~20、特に好ましくは3~18、最も好ましくは4~

15 (g / 100 g) の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.

3 ~ 3.0 dl / g、好ましくは0.3 ~ 2.5 dl / g、さらに好ましくは0.3 ~ 2.3 dl / g、特に好ましくは0.3 ~ 2.2 dl / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上、好ましくは7以上、さらに好ましくは9以上、特に好ましくは10以上である。

このゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)およびSiH基含有化合物(B)の他に、必要に応じて触媒(E)、さらには反応抑制剤(F)を含有させることができる。

前記触媒(E)としては、白金系触媒が好ましく用いられる。

本発明に係る密封シールパッキン部品は、上記の、本発明に係る架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物からなることを特徴としている。

本発明に係る架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物は、家庭用ジャーパッキング、給湯用パッキン、工業用パッキン等の密封シールパッキンや、コンデンサー封口シールパッキンなどの製造の際に好適に用いられる。

なお、本明細書中の「密封シールパッキン用ゴム組成物」の語は、コンデンサー封口シールパッキン用ゴム組成物を含んで用いられる。

本発明に係る架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物は、架橋速度が速く生産性に優れ、HAV、UHFなどの熱空気架橋が可



能で耐金型汚染性に優れ、しかも、強度特性、耐傷付き性、耐熱老化性、耐圧縮永久歪み性および耐薬品性などの特性に優れる密封シールパッキン用架橋ゴム成形体（発泡体も含む）を提供することができる。

本発明に係る密封シールパッキン部品は、上記のような効果を有する架橋ゴム成形体からなるので、家庭用ジャーパッキング、給湯用パッキン、工業用パッキン等の密封シールパッキンや、コンデンサー封口シールパッキンなどの用途に広く用いられる。

本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物は、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）：5～100重量部と、

下記平均組成式（1）



（式中、 $\text{R}^1$  は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$  は1.95～2.05の正数である。）

で示されるオルガノポリシロキサン（I）：95～0重量部

〔成分（A）と成分（I）の合計量は100重量部〕と、

SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物（B1）：（A）、（I）成分中の脂肪族不飽和結合1個当りケイ素原子に結合した水素原子を0.2～5個与える量と、

白金族金属系触媒（E1）：触媒量と含有してなることを特徴としている。

また、このゴム組成物は、更に発泡剤を成分（A）と成分（I）

の合計 100 重量部に対して、0.5～30 重量部含有してなるオレフィン系ゴム組成物よりなっているもよい。

本発明に係る建築用ガスケットは、上記の本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物（オレフィン系ゴム組成物）の硬化物よりなることを特徴としている。

このガスケットは、上記オレフィン系ゴム組成物のスポンジ状硬化物よりなっているもよい。

本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物は、耐熱性、耐クリープ性に優れ、圧縮成型、熱風加硫で良好な弾性を有するガスケットを短時間で効率よく生産することができる。

本発明に係る建築用ガスケットは、ガラス保持力が高く、耐候性、耐クリープ性、着色性に優れ、温度安定性に優れている。

本発明に係る架橋可能なゴムロール用ゴム組成物は、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）：5～100 重量部と、

下記平均組成式（1）



（式中、 $R^1$  は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$  は 1.95～2.05 の正数である。）

で示されるオルガノポリシロキサン（I）：95～0 重量部

〔成分（A）と成分（I）の合計量は 100 重量部〕と、

SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ SiH 基含有化合物（B1）：（A）、（I）成分中の脂肪族不飽和結合 1 個当りケイ

素原子に結合した水素原子を0.2～5個与える量と、

白金族金属系触媒（E1）：触媒量と含有してなることを特徴としている。

このゴム組成物は、更に導電性物質を含有して、そのゴム硬化物層に導電性または半導電性を与えるようにしたゴム組成物であってもよい。

本発明に係る架橋可能なゴムロール用ゴム組成物は、耐熱性に優れ、圧縮成型、熱風加硫で良好な弾性を有するポリオレフィン系ゴムロールを短時間で効率よく生産することができる。

本発明に係るゴムロールは、硫黄加硫にみられる高温領域の使用でみられる硬度上昇がなく耐候性にも優れ、押し出し熱風加硫成型が可能で、優れたゴム弾性をもつ。また、これらを導電化した場合、この導電ロールはバラツキの少ない安定した電気抵抗を有し、シリコンに特に顕著にみられる複写機等におけるOPC（organic photoconductor）（感光体）汚染も殆どなく、このため特に現像ロール、転写ロール、帯電ロール等に適した高安定性の半導電ロールを得ることができる。

なお、明細書中の「架橋ゴム成形体」の語は、非発泡体のみを指す場合と、非発泡体と発泡体の両方を指す場合がある。

#### 図面の簡単な説明

図1は、本発明の一実施例に係るジッパータイプガスキットの図2A-A線に沿った断面図である。

図2は、同例の平面図である。

### 発明を実施するための最良の形態

以下、本発明に係る架橋（加硫）可能なゴム組成物およびその用途について具体的に説明する。

本発明に係る第1の架橋可能なゴム組成物は、

シート状に成形した後熱空気（熱風）架橋して得られる架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下、好ましくは50%以下、より好ましくは40%以下、さらに好ましくは30%以下、特に好ましくは20%以下である。

本発明に係る第2の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A）、SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物（B）および必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）を含有している。

本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A1）、SiH基含有化合物（B）および必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）を含有している。

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A）、SiH基含有化合物（B）、ポリオレフィン樹脂（D1）および必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）を含有している。

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A）、SiH基含有化合物（B）、アルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）お

よび必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）を含有している。

以下、これらの成分等について説明する。

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム

共重合体ゴム（A）

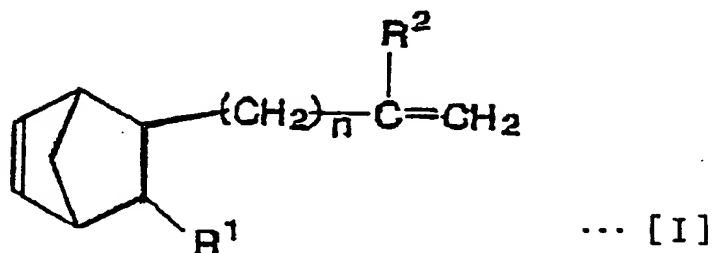
本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、エチレンと、炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンと、非共役ポリエンとのランダム共重合体である。

また、本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）には、エチレンと、炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンと、非共役ポリエンとして特定の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物（1）および他の特定の非共役ポリエン化合物（2）とのエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A1）も含まれる。

このような炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとしては、具体的には、プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン、1-ノネン、1-デセン、1-ウンデセン、1-ドデセン、1-トリデセン、1-テトラデセン、1-ペンタデセン、1-ヘキサデセン、1-ヘプタデセン、1-ノナデセン、1-エイコセン、9-メチル-1-デセン、11-メチル-1-ドデセン、12-エチル-1-テトラデセンなどが挙げられる。中でも、炭素原子数3～10の $\alpha$ -オレフィンが好ましく、特にプロピレン、1-ブテン、1-ヘキセン、1-オクテンなどが好ましく用いられる。

これらの $\alpha$ -オレフィンは、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いられる。

本発明で用いられる非共役ポリエンは、下記の一般式〔I〕または〔II〕で表わされる末端ビニル基含有ノルボルネン化合物（1）である。



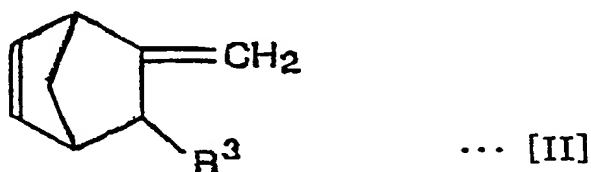
一般式〔I〕において、 $n$ は0ないし10の整数であり、

$R^1$ は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基であり、

$R^1$ の炭素原子数1～10のアルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、 $n$ -ブチル基、イソブチル基、 $sec$ -ブチル基、 $t$ -ブチル基、 $n$ -ペンチル基、イソペンチル基、 $t$ -ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基などが挙げられる。

$R^2$ は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である。

$R^2$ の炭素原子数1～5のアルキル基の具体例としては、上記  $R^1$ の具体例のうち、炭素原子数1～5のアルキル基が挙げられる。



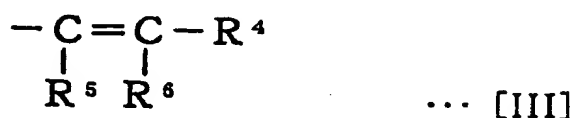
一般式 [II] において、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基である。

$R^3$  のアルキル基の具体例としては、上記  $R^1$  のアルキル基の具体例と同じアルキル基を挙げることができる。

上記一般式 [I] または [II] で表わされるノルボルネン化合物としては、具体的には、5-メチレン-2- ノルボルネン、5-ビニル-2- ノルボルネン、5-(2-プロペニル)-2- ノルボルネン、5-(3-ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-2- プロペニル)-2- ノルボルネン、5-(4-ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(5-ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(1-メチル-4- ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(2, 3-ジメチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(2-エチル-3- ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(6-ヘプテニル)-2- ノルボルネン、5-(3-メチル-5- ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(3, 4-ジメチル-4- ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(3-エチル-4- ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(7-オクテニル)-2- ノルボルネン、5-(2-メチル-6- ヘプテニル)-2- ノルボルネン、5-(1, 2-ジメチル-5- ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(5-エチル-5- ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(1, 2, 3-トリメチル-4- ペンテニル)-2- ノルボルネンなど挙げられる。このなかでも、5-ビニル-2- ノルボルネン、5-メチレン-2- ノルボルネン、5-(2-プロペニル)-2- ノルボルネン、5-(3-ブテニル)-2- ノルボルネン、5-(4-ペンテニル)-2- ノルボルネン、5-(5-ヘキセニル)-2- ノルボルネン、5-(6-ヘプテニル)-2- ノルボルネン、5-(7-オクテニル)-2- ノル

ボルネンが好ましい。これらのノルボルネン化合物は、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

上記ノルボルネン化合物たとえば5-ビニル-2-ノルボルネンの他に、本発明の目的とする物性を損なわない範囲で、下記一般式 [II] で表わされる基を含有する非共役ポリエン化合物 (2) を併用することもできる。



一般式 [III] において、 $\text{R}^4$  は炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、 $\text{R}^5$  および  $\text{R}^6$  は、それぞれ独立に、水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、

$\text{R}^4$ 、 $\text{R}^5$ 、 $\text{R}^6$  の炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基としては、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、イソプロピル基、*n*-ブチル基、イソブチル基、*sec*-ブチル基、*t*-ブチル基、*n*-ペンチル基、イソペンチル基、*t*-ペンチル基、ネオペンチル基、ヘキシル基、イソヘキシル基、ヘプチル基、オクチル基、ノニル基、デシル基などが挙げられる。

上記一般式 [III] で表わされる基を含有する非共役ポリエン (2) としては、具体的には、1,4-ヘキサジエン、3-メチル-1,4-ヘキサジエン、4-メチル-1,4-ヘキサジエン、5-メチル-1,4-ヘキサジエン、4,5-ジメチル-1,4-ヘキサジエン、6-メチル-1,6-オクタジエン、7-メチル-1,6-オクタジエン、6-エチル-1,6-オクタジエン、



6-プロピル-1,6- オクタジエン、6-ブチル-1,6- オクタジエン、6-メチル-1,6- ノナジエン、7-メチル-1,6- ノナジエン、6-エチル-1,6-ノナジエン、7-エチル-1,6-ノナジエン、6-メチル-1,6-デカジエン、7-メチル-1,6-デカジエン、6-メチル-1,6- ウンデカジエン等の鎖状非共役ジエン；

メチルテトラヒドロインデン、5-エチリデン-2- ノルボルネン、5-イソプロピリデン-2- ノルボルネン、5-ビニリデン-2- ノルボルネン、6-クロロメチル-5- イソプロペニル-2- ノルボルネン、ジシクロペンタジエン等の環状非共役ジエン；

2,3-ジイソプロピリデン-5- ノルボルネン、2-エチリデン-3- イソプロピリデン-5- ノルボルネン、2-プロペニル-2,2- ノルボルナジエン、4-エチリデン-8- メチル-1,7- ノナジエン、4,8-ジメチル-1,4,8- デカトリエン等のトリエンなどが挙げられる。上記ノルボルネン化合物（1）のほかに、これらの化合物を併用すると、接着性および環境劣化後の耐油性が向上する。

上記のような諸成分からなるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A）、たとえば本発明に係る第2の架橋可能なゴム組成物で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体（A）は、以下のような特性を有している。

（i）エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、（a）エチレンで導かれる単位と（b）炭素原子数3

～20の $\alpha$ -オレフィン（以下単に $\alpha$ -オレフィンということがあ  
る）から導かれる単位とを、40/60～95/5、好ましくは5  
0/50～90/10、好ましくは55/45～85/15、特に  
好ましくは60/40～80/20のモル比〔(a)/(b)〕で  
含有している。このモル比が上記範囲内にあると、耐熱老化性、強  
度特性およびゴム弾性に優れるとともに、耐寒性および加工性に優  
れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(ii) ヨウ素価

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴ  
ム(A)のヨウ素価は、0.5～50(g/100g)、好ましくは0.8  
～40(g/100g)、さらに好ましくは1～30(g/100g)、特に好まし  
くは1.5～25(g/100g)である。このヨウ素価が上記範囲内にあ  
ると、架橋効率の高いゴム組成物が得られ、耐圧縮永久歪み性に優  
れるとともに、耐環境劣化性(＝耐熱老化性)に優れた架橋ゴム成  
形体を提供できるゴム組成物が得られる。ヨウ素価が50を超え  
ると、コスト的に不利になるので好ましくない。

(iii) 極限粘度

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴ  
ム(A)の135℃デカリン中で測定した極限粘度 $[\eta]$ は、0.  
3～10dl/g、通常は0.5～10dl/g、好ましくは0.  
6～8dl/g、さらに好ましくは0.7～6dl/g、特に好ま  
しくは0.8～5dl/gであることが望ましい。この極限粘度  
 $[\eta]$ が上記範囲内にあると、強度特性および耐圧縮永久歪み性に  
優れるとともに、加工性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム

組成物が得られる。

(iv) 分子量分布 ( $M_w/M_n$ )

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)のGPCにより測定した分子量分布( $M_w/M_n$ )は、2~200、好ましくは3~50、さらに好ましくは3.3~40、特に好ましくは3.5~30である。たとえば2~200、好ましくは2.5~150、さらに好ましくは3~120、特に好ましくは5~100である。この分子量分布( $M_w/M_n$ )が上記範囲内にあると、加工性に優れるとともに、強度特性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(v) 有効網目鎖密度( $\nu$ ) [架橋密度の指標]

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A) 100gに対し、ジクミルパーオキサイド0.01モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網目鎖密度( $\nu$ )が $1.5 \times 10^{20}$ 個/cm<sup>3</sup>以上、好ましくは $1.8 \times 10^{20}$ 個/cm<sup>3</sup>以上、さらに好ましくは $2.0 \times 10^{20}$ 個/cm<sup>3</sup>以上である。この有効網目鎖密度( $\nu$ )が $1.5 \times 10^{20}$ 個/cm<sup>3</sup>以上であると、耐圧縮永久歪み性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(vi)  $\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1)/\nu$

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)は、100℃でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力 $0.4 \times 10^6$ dyn/cm<sup>2</sup>を示すときのずり速度 $\gamma_1$ とずり応力 $2.4 \times 10^6$ dyn/cm<sup>2</sup>を示すときのずり速度 $\gamma_2$ との比

$\gamma_2/\gamma_1$ と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [III]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log}(\gamma_2/\gamma_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [III]

で表わされる関係を満足している。

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、 $\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1)$  と有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比 [ $\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1) / \nu$ ] が、

$$0.04 \times 10^{-19} \sim 0.20 \times 10^{-19},$$

$$\text{好ましくは } 0.042 \times 10^{-19} \sim 0.19 \times 10^{-19},$$

$$\text{さらに好ましくは } 0.050 \times 10^{-19} \sim 0.18 \times 10^{-19}$$

である。この比 [ $\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1) / \nu$ ] が上記範囲内にあると、加工性に優れるとともに、強度特性および耐圧縮永久歪みに優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

さらに、次の特性を有していることが好ましい。

(vii) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) の動的粘弾性測定器より求めた分岐指数は5以上が望ましく、好ましくは7以上、さらに好ましくは9以上、特に好ましくは10以上である。この分岐指数の値が5より小さいと、高ずり速度領域での粘度が高くなり、流動性が悪化するため、ロール加工性および押出加工性が悪くなる。

また、本発明に係る第3の架橋可能なゴム組成物で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (

A 1) は、以下のような特性を有している。

(i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比  
(エチレン /  $\alpha$ -オレフィン)

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A 1) は、(a) エチレンで導かれる単位と (b) 炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィン (以下単に  $\alpha$ -オレフィンということがある) から導かれる単位とを、40 / 60 ~ 95 / 5、好ましくは 50 / 50 ~ 90 / 10、好ましくは 55 / 45 ~ 85 / 15、特に好ましくは 60 / 40 ~ 80 / 20 のモル比 [(a) / (b)] で含有している。このモル比が上記範囲内にあると、耐熱老化性、強度特性およびゴム弾性に優れるとともに、耐寒性および加工性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(ii) ヨウ素価

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A 1) のヨウ素価は、0.5 ~ 50 (g/100g)、好ましくは 0.8 ~ 40 (g/100g)、さらに好ましくは 1 ~ 30 (g/100g)、特に好ましくは 1.5 ~ 25 (g/100g) である。

一般式 [I]、[II] で表わされる非共役ポリエンに由来するヨウ素価 (x) と一般式 [III] で表わされる基を含有する非共役ポリエンに由来するヨウ素価 (y) との比率 (x) / (y) は 1 / 50 ~ 50 / 1、好ましくは 1 / 30 ~ 30 / 1、さらに好ましくは 1 / 10 ~ 10 / 1、特に好ましくは 1 / 5 ~ 5 / 1、特に好ましくは 2 / 1 ~ 1 / 2 であることが好ましい。(x) / (y) が 1 / 50 より小さくなると、架橋度が小さくなり耐圧縮永久歪み性など

の物性が低下し、また、長鎖分岐数が減少するので流動性が悪くなり、その結果加工性も悪くなる。一方、 $(x)/(y)$  が  $50/1$  より大きいと、接着性および老化後の耐油性が悪くなる。

このヨウ素価が上記範囲内にあると、架橋効率の高いゴム組成物が得られ、耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、耐環境劣化性（＝耐熱老化性）に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。ヨウ素価が  $50$  を超えると、コスト的に不利になるので好ましくない。

#### (iii) 極限粘度

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A1)の $135^{\circ}\text{C}$ デカリン中で測定した極限粘度 $[\eta]$ は、 $0.3 \sim 10 \text{ dl/g}$ 、好ましくは $0.5 \sim 8 \text{ dl/g}$ 、さらに好ましくは $0.7 \sim 6 \text{ dl/g}$ 、特に好ましくは $0.8 \sim 5 \text{ dl/g}$ であることが望ましい。この極限粘度 $[\eta]$ が上記範囲内にあると、強度特性および耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、加工性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

#### (iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A1)の動的粘弾性測定器より求めた分岐指数は $5$ 以上、好ましくは $7$ 以上、さらに好ましくは $9$ 以上、特に好ましくは $10$ 以上である。この分岐指数の値が $5$ より小さいと、高ずり速度領域での粘度が高くなり、流動性が悪化するため、ロール加工性および押出加工性が悪くなる。

本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン

ランダム共重合体 (A 1) は、上記 (i) ~ (iv) の物性の他に、下記の (v) ~ (vii) の物性を有していることが好ましい。

(v) 分子量分布 ( $M_w / M_n$ )

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A 1) の GPC により測定した分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) は、2 ~ 200、好ましくは 2.5 ~ 150、さらに好ましくは 3 ~ 120、特に好ましくは 5 ~ 100 である。

この分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) が上記範囲内にあると、加工性に優れるとともに、強度特性に優れた架橋ゴム成形体を提供できるゴム組成物が得られる。

(vi) 有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) [架橋密度の指標] および (vii)  $\text{Log}(\gamma_2 / \gamma_1) / \nu$  は、上述したエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) の (v)、(vi) と同じである。

本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、下記化合物 (J) および (K) を主成分として含有する触媒の存在下に、重合温度 30 ~ 60℃、特に 30 ~ 59℃、重合圧力 4 ~ 12 kgf/cm<sup>2</sup>、特に 5 ~ 8 kgf/cm<sup>2</sup>、非共役ポリエンとエチレンとの供給量のモル比 (非共役ポリエン/エチレン) 0.01 ~ 0.2 の条件で、エチレンと、炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンと、上記一般式 [I] または [II] で表わされる末端ビニル基含有ノルボルネン化合物とをランダム共重合することにより得られる。共重合は、炭化水素媒体中で行なうのが好ましい。

(J)  $VO(OR)_nX_{3-n}$  (式中、Rは炭化水素基であり、Xはハロゲン原子であり、nは0または1～3の整数である) で表わされる可溶性バナジウム化合物、または  $VX_4$  (Xはハロゲン原子である) で表わされるバナジウム化合物。

上記可溶性バナジウム化合物(J)は、重合反応系の炭化水素媒体に可溶性の成分であり、具体的には、

一般式  $VO(OR)_aX_b$  または  $V(OR)_cX_d$  (式中、Rは炭化水素基であり、 $0 \leq a \leq 3$ 、 $0 \leq b \leq 3$ 、 $2 \leq a + b \leq 3$ 、 $0 \leq c \leq 4$ 、 $0 \leq d \leq 4$ 、 $3 \leq c + d \leq 4$ ) で表わされるバナジウム化合物、あるいはこれらの電子供与体付加物を代表例として挙げるることができる。

より具体的には、 $VOCl_3$ 、 $VO(OC_2H_5)Cl_2$ 、  
 $VO(OC_2H_5)_2Cl$ 、 $VO(O-is0-C_3H_7)Cl_2$ 、  
 $VO(O-n-C_4H_9)Cl_2$ 、 $VO(OC_2H_5)_3$ 、 $VOBr_3$ 、  
 $VCl_4$ 、 $VOCl_3$ 、 $VO(O-n-C_4H_9)_3$ 、  
 $VCl_3 \cdot 2OC_6H_{12}OH$ などを例示することができる。

(K)  $R'_mAlX'_{3-m}$  (R'は炭化水素基であり、X'はハロゲン原子であり、mは1～3の整数である) で表わされる有機アルミニウム化合物。

上記有機アルミニウム化合物(K)としては、具体的には、

トリエチルアルミニウム、トリブチルアルミニウム、トリイソプロピルアルミニウム等のトリアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムエトキシド、ジブチルアルミニウムブトキシド等のジアルキルアルミニウムアルコキシド；



エチルアルミニウムセスキエトキシド、ブチルアルミニウムセスキブトキシド等のアルキルアルミニウムセスキアルコキシド；

$R^{1}_{0.5}Al(O R^1)_{0.5}$ などで表わされる平均組成を有する部分的にアルコキシ化されたアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムクロリド、ジブチルアルミニウムクロリド、ジエチルアルミニウムブロミド等のジアルキルアルミニウムハライド；

エチルアルミニウムセスキクロリド、ブチルアルミニウムセスキクロリド、エチルアルミニウムセスキブロミド等のアルキルアルミニウムセスキハライド、エチルアルミニウムジクロリド、プロピルアルミニウムジクロリド、ブチルアルミニウムジブロミド等のアルキルアルミニウムジハライドなどの部分的にハロゲン化されたアルキルアルミニウム；

ジエチルアルミニウムヒドリド、ジブチルアルミニウムヒドリド等のジアルキルアルミニウムヒドリド、エチルアルミニウムジヒドリド、プロピルアルミニウムジヒドリド等のアルキルアルミニウムジヒドリドなどの部分的に水素化されたアルキルアルミニウム；

エチルアルミニウムエトキシクロリド、ブチルアルミニウムブトキシクロリド、エチルアルミニウムエトキシブロミドなどの部分的にアルコキシ化およびハロゲン化されたアルキルアルミニウムなどを挙げることができる。

本発明において、上記化合物（J）のうち、 $VOCl_3$ で表わされる可溶性バナジウム化合物と、上記化合物（K）のうち、 $Al(OC_2H_5)_2Cl / Al_2(OC_2H_5)_3Cl_3$ のブレンド物（ブレン

ド比は 1 / 5 以上) を触媒成分として使用すると、ソックスレー抽出 (溶媒: 沸騰キシレン、抽出時間: 3 時間、メッシュ: 3 2 5) 後の不溶解分が 1 % 以下であるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が得られるので好ましい。

また、上記共重合の際に使用する触媒として、いわゆるメタロセン触媒たとえば特開平 9 - 4 0 5 8 6 号公報に記載されているメタロセン触媒を用いても差し支えない。

また、本発明で用いられるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) は、極性モノマーたとえば不飽和カルボン酸またはその誘導体 (たとえば酸無水物、エステル) でグラフト変性されていてもよい。

このような不飽和カルボン酸としては、具体的には、アクリル酸、メタクリル酸、マレイン酸、フマル酸、イタコン酸、シトラコン酸、テトラヒドロフタル酸、ビシクロ (2, 2, 1) ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸などが挙げられる。

不飽和カルボンの酸無水物としては、具体的には、無水マレイン酸、無水イタコン酸、無水シトラコン酸、無水テトラヒドロフタル酸、ビシクロ (2, 2, 1) ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸無水物などが挙げられる。これらの中でも、無水マレイン酸が好ましい。

不飽和カルボン酸エステルとしては、具体的には、アクリル酸メチル、メタクリル酸メチル、マレイン酸ジメチル、マレイン酸モノメチル、フマル酸ジメチル、イタコン酸ジメチル、シトラコン酸ジエチル、テトラヒドロフタル酸ジメチル、ビシクロ (2, 2, 1) ヘプト-2-エン-5, 6-ジカルボン酸ジメチルなどが挙げられる。これら

の中でも、アクリル酸メチル、アクリル酸エチルが好ましい。

上記の不飽和カルボン酸等のグラフト変性剤（グラフトモノマー）は、それぞれ単独または2種以上の組み合わせで使用されるが、何れの場合も前述したグラフト変性前のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム100g当たり、0.1モル以下のグラフト量にするのがよい。

上記のようなグラフト量が上記範囲にあるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）を用いると、耐寒性に優れた架橋ゴム成形体を提供し得る、流動性（成形加工性）に優れたゴム組成物が得られる。

グラフト変性したエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）は、前述した未変性のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴムと不飽和カルボン酸またはその誘導体とを、ラジカル開始剤の存在下に反応させることにより得ることができる。

このグラフト反応は溶液に行なうこともできるし、熔融状態で行なってもよい。熔融状態でグラフト反応を行なう場合には、押出機の中で連続的行なうことが最も効率的であり、好ましい。

グラフト反応に使用されるラジカル開始剤としては、具体的には、ジクミルパーオキシド、ジ-*t*-ブチルパーオキシド、ジ-*t*-ブチルパーオキシ-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、*t*-ブチルクミルパーオキシド、ジ-*t*-アミルパーオキシド、*t*-ブチルヒドロパーオキシド、2,5-ジメチル-2,5-ジ（*t*-ブチルパーオキシ）ヘキシン-3、2,5-ジメチル-2,5-ジ（ベンゾイルパーオキシ）ヘキサ

ン、2,5-ジメチル-2,5-ジ(1-ブチルパーオキシ)ヘキサン、 $\alpha$ ,  
 $\alpha'$ -ビス(1-ブチルパーオキシ-m-イソプロピル)ベンゼン等の  
ジアルキルパーオキサイド類；

1-ブチルパーオキシアセテート、1-ブチルパーオキシイソブチレ  
ート、1-ブチルパーオキシピバレート、1-ブチルパーオキシマレイ  
ン酸、1-ブチルパーオキシネオデカノエート、1-ブチルパーオキシ  
ベンゾエート、ジ-1-ブチルパーオキシフタレート等のパーオキシ  
エステル類；

ジシクロヘキサノンパーオキサイド等のケトンパーオキサイド類  
；

およびこれらの混合物などが挙げられる。中でも半減期1分を与え  
る温度が130～200℃の範囲にある有機過酸化物が好ましく、  
特に、ジクミルパーオキサイド、ジ-1-ブチルパーオキサイド、ジ  
-1-ブチルパーオキシ-3,3,5-トリメチルシクロヘキサン、1-ブチ  
ルクミルパーオキサイド、ジ-1-アミルパーオキサイド、1-ブチル  
ヒドロパーオキサイドなどの有機過酸化物が好ましい。

また、不飽和カルボン酸またはその誘導体（たとえば酸無水物、  
エステル）以外の極性モノマーとしては、水酸基含有エチレン性不  
飽和化合物、アミノ基含有エチレン性不飽和化合物、エポキシ基含  
有エチレン性不飽和化合物、芳香族ビニル化合物、ビニルエステル  
化合物、塩化ビニルなどが挙げられる。

#### S i H基含有化合物（B）

本発明で用いられるS i H基含有化合物（B）は、エチレン・ $\alpha$

- オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）と反応し、架橋剤として作用する。このSiH基含有化合物（B）は、その分子構造に特に制限はなく、従来製造されている例えば線状、環状、分岐状構造あるいは三次元網目状構造の樹脂状物などでも使用可能であるが、1分子中に少なくとも2個、好ましくは3個以上のケイ素原子に直結した水素原子、すなわちSiH基を含んでいることが必要である。

このようなSiH基含有化合物（B）としては、通常、下記の一般組成式



で表わされる化合物を使用することができる。

上記一般組成式において、 $R^7$  は、脂肪族不飽和結合を除く、炭素原子数1～10、特に炭素原子数1～8の置換または非置換の1価炭化水素基であり、このような1価炭化水素基としては、前記一般式〔I〕の $R^1$  に例示したアルキル基の他に、フェニル基、ハロゲン置換のアルキル基たとえばトリフロロプロピル基を例示することができる。中でも、メチル基、エチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基が好ましく、特にメチル基、フェニル基が好ましい。

また、 $b$  は、 $0 \leq b < 3$ 、好ましくは $0.6 < b < 2.2$ 、特に好ましくは $1.5 \leq b \leq 2$ であり、 $c$  は、 $0 < c \leq 3$ 、好ましくは $0.002 \leq c < 2$ 、特に好ましくは $0.01 \leq c \leq 1$ であり、かつ $b + c$  は、 $0 < b + c \leq 3$ 、好ましくは $1.5 < b + c \leq 2.7$ である。

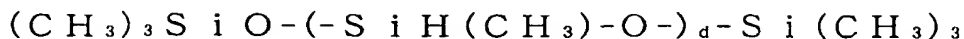
このSiH基含有化合物(B)は、1分子中のケイ素原子数が好ましくは2~1000個、特に好ましくは2~300個、最も好ましくは4~200個のオルガノハイドロジェンポリシロキサンであり、具体的には、

1,1,3,3-テトラメチルジシロキサン、1,3,5,7-テトラメチルテトラシクロシロキサン、1,3,5,7,8-ペンタメチルペンタシクロシロキサン等のシロキサンオリゴマー；

分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、分子鎖両末端シラノール基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサン、分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体、 $R^7_2(H)SiO_{1/2}$ 単位と $SiO_{4/2}$ 単位とからなり、任意に $R^7_3SiO_{1/2}$ 単位、 $R^7_2SiO_{2/2}$ 単位、 $R^7(H)SiO_{2/2}$ 単位、 $(H)SiO_{3/2}$ または $R^7SiO_{3/2}$ 単位を含み得るシリコーンレジンなどを挙げることができる。

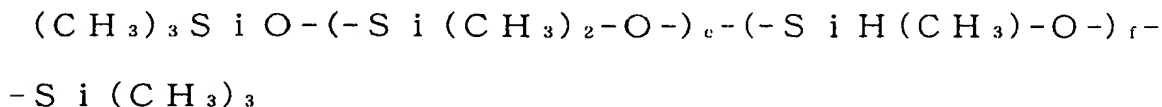
分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、

フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



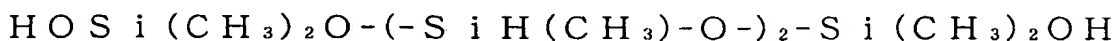
[式中の d は 2 以上の整数である。]

分子鎖両末端トリメチルシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。

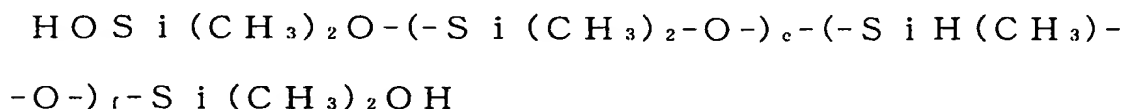


[式中の e は 1 以上の整数であり、f は 2 以上の整数である。]

分子鎖両末端シラノール基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



分子鎖両末端シラノール基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



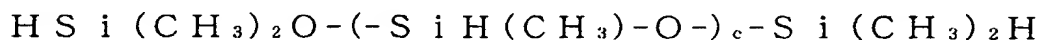
〔式中の e は 1 以上の整数であり、 f は 2 以上の整数である。〕

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



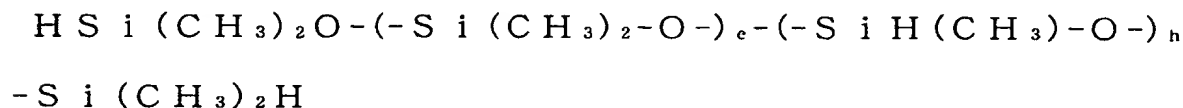
〔式中の e は 1 以上の整数である。〕

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖メチルハイドロジェンポリシロキサンとしては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



〔式中の e は 1 以上の整数である。〕

分子鎖両末端ジメチルハイドロジェンシロキシ基封鎖ジメチルシロキサン・メチルハイドロジェンシロキサン共重合体としては、たとえば下式で示される化合物、さらには下式においてメチル基の一部または全部をエチル基、プロピル基、フェニル基、トリフロロプロピル基等で置換した化合物などが挙げられる。



〔式中の e および h は、それぞれ 1 以上の整数である。〕

このような化合物は、公知の方法により製造することができ、た



例えばオクタメチルシクロテトラシロキサンおよび／またはテトラメチルシクロテトラシロキサンと、末端基となり得るヘキサメチルジシロキサンあるいは1,3-ジハイドロ-1,1,3,3-テトラメチルジシロキサンなどの、トリオルガノシリル基あるいはジオルガノハイドロジェンシロキシ基を含む化合物とを、硫酸、トリフルオロメタンスルホン酸、メタンスルホン酸等の触媒の存在下に、 $-10^{\circ}\text{C}$ ～ $+40^{\circ}\text{C}$ 程度の温度で平衡化させることによって容易に得ることができる。

S i H基含有化合物（B）は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）100重量部、またはエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）との合計量100重量部に対して、0.1～100重量部、好ましくは0.1～75重量部、より好ましくは0.1～50重量部、さらに好ましくは0.2～30重量部、さらにより好ましくは0.2～20重量部、特に好ましくは0.5～10重量部、最も好ましくは0.5～5重量部の割合で用いられる。上記範囲内の割合でS i H基含有化合物（B）を用いると、耐圧縮永久歪み性に優れるとともに、架橋密度が適度で強度特性および伸び特性に優れた架橋ゴム成形体（スポンジを含む）を形成できるゴム組成物が得られる。100重量部を超える割合でS i H基含有化合物（B）を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

また、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）の架橋に関与する脂肪族不飽和基に対するS i H基

の割合（S i H基／脂肪族不飽和基）は、0.2～20、さらには0.5～10、特に0.7～5であることが好ましい。

また、本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用およびゴムロール用ゴム組成物で用いられるS i H基含有化合物（B）としては、直鎖状、環状、分枝状のいずれであってもよく、付加反応硬化型シリコーンゴム組成物の架橋剤として公知なオルガノハイドロジエンポリシロキサンを使用することができるが、通常、下記平均組成式で示されるS i H基含有化合物（B1）を用いることが望ましい。

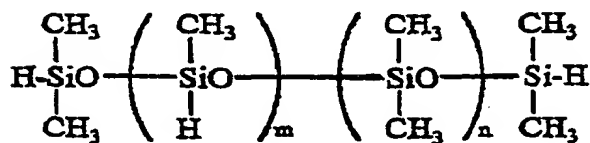
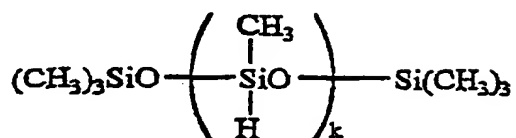
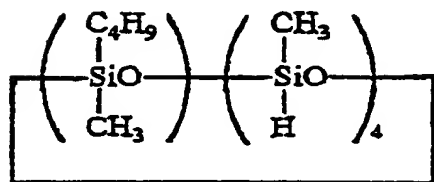
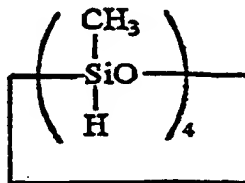
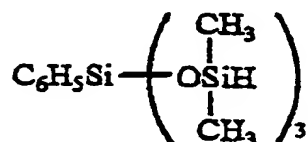


式中、 $R^a$  は、メチル基、エチル基、プロピル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、ベンジル基、2-フェニルエチル基、2-フェニルプロピル基等のアラルキル基、およびこれらの基の水素原子の少なくとも一部をハロゲン原子等で置換した基、たとえば3,3,3-トリフルオロプロピル基等の、同一または異種の好ましくは炭素数1～12、特に1～8のアルキル基、アルケニル基、アリール基、アラルキル基や、これらのハロゲン置換体などの非置換または置換の一価炭化水素基であり、 $a$ 、 $b$ は $1 \leq a \leq 2.2$ 、 $0.002 \leq b \leq 1$ 、 $1.002 \leq a + b \leq 3$ を満たす正数である。

上記S i H基は一分子中に2個以上、好ましくは3個以上有するが、これは分子鎖末端にあっても、分子鎖の途中にあってもよい。また、このオルガノハイドロジエンポリシロキサンとしては、25℃における粘度が0.5～10,000 cSt、特に1～300 cSt

tであることが好ましい。

このようなオルガノハイドロジエンポリシロキサンとしては、具体的に下記構造式の化合物を例示することができる。



(kは2～10の整数、m、nはそれぞれ0～10の整数である。)

上記オルガノハイドロジエンポリシロキサンの配合量は、(A)成分と(B)成分との合計100重量部に対し0.1～40重量部配合される。また、(A)成分と(B)成分の脂肪族不飽和結合(アルケニル基およびジエン基など)1個に対し、ケイ素原子に結合

した水素原子（≡SiH基）の割合が0.5～1.0の範囲が適当であり、好ましくは0.7～0.9となるような範囲が適当である。0.5より少ないと架橋が十分でなく、十分な機械的強度が得られないことがあり、また、1.0より多いと硬化後の物理特性が低下し、特に耐熱性と耐圧縮永久歪み性が著しく低下することがある。

#### アルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）

本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物で用いられるアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）は、下記平均組成式（1）で示される。

$$\text{R}^n\text{SiO}_{(4-n)/2} \cdots (1)$$

この式（1）において、 $\text{R}^n$ は同一または異種の非置換または置換の1価炭化水素基であり、 $n$ は1.98～2.02の正数である。

$\text{R}^n$ としては、炭素原子数1～10、特に炭素原子数1～8の1価炭化水素基が好適であり、たとえばメチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基等のアルキル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基などの脂肪族飽和炭化水素基、ビニル基、アリル基、ブテニル基、ヘキセニル基等のアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、これらの基の炭素原子に結合した水素原子の一部または全部をハロゲン原子、シアノ基等で置換したクロロメチル基、トリフルオロプロピル基、シアノエチル基などが挙げられる。より好ましい基は、メチル基、ビニル基、フェニル基、トリフルオロプロピル基である。

また、このオルガノポリシロキサン（C）は、アルケニル基、好

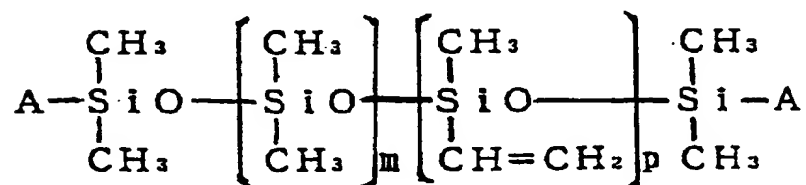
ましくは炭素原子数 2 ～ 8 のアルケニル基、特に好ましくはビニル基を少なくとも 2 個有していることが必要である。R<sup>9</sup> 中のアルケニル基の含有量は、0.001 ～ 20 モル%、特に 0.025 ～ 6 モル%であることが好ましい。

また、上記式 (1) で示されるアルケニル基含有オルガノポリシロキサン (C) は、基本的には直鎖状であることが好ましいが、直鎖状、分岐状等の分子構造の異なる 1 種または 2 種以上を混合して使用してもよい。

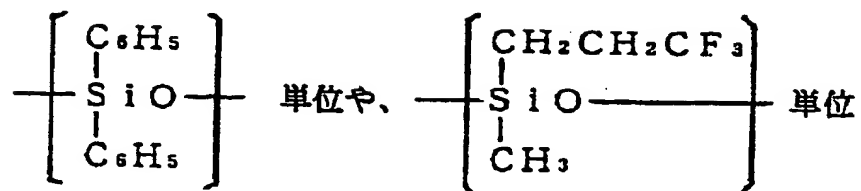
上記オルガノポリシロキサン (C) は、平均重合度が 100 ～ 20,000、特に 3,000 ～ 10,000 の範囲内にあることが好ましい。具体的には、



(式中、m は正の整数であり、n は 0 以上の正数である。)、



(式中、 $m$ は正の整数であり、 $p$ は2以上の整数であり、 $A$ は $-CH_3$ または $-OH$ 基である。)や、これらの主鎖に、



を導入したものが例示される。

上記のようなオルガノポリシロキサン(C)は、それ自体公知の方法で合成される。たとえばアルケニル基含有オルガノポリシロキサン(C)の合成法の詳細は、特願平10-227778号明細書にシリコーンゴムの合成法として記載されている。

本発明においては、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)とアルケニル基含有オルガノポリシロキサン(C)とのブレンド比率 $[(A)/(C)]$ は2/98~98/2であり、好ましくは3/97~97/3、さらに好ましくは5/95~95/5である。この範囲であれば、耐傷付き性および耐圧縮永久歪み性、耐摩耗性に優れ、プレス架橋成形やインジェクション架橋成形した場合に、金型汚染が少なく、強度特性に優れる架橋ゴム成形体を調製できるゴム組成物が得られる。

#### ポリオレフィン樹脂(D1)

本発明に係る第4の架橋可能なゴム組成物で用いられるポリオレフィン樹脂(D1)は、熱可塑性樹脂であり、具体的には、

高密度ポリエチレン（HDPE）、中密度ポリエチレン（MDPE）、低密度ポリエチレン（LDPE）、直鎖状低密度ポリエチレン（LLDPE）等のエチレン単独重合体（ポリエチレン）ないしエチレンと炭素原子数 3 ～ 20、好ましくは 3 ～ 8 の  $\alpha$ -オレフィンとからなる結晶性エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；

プロピレン単独重合体、プロピレンブロック共重合体、プロピレンランダム共重合体等のポリプロピレン；

プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン等の炭素原子数 3 ～ 20、好ましくは 3 ～ 8 の  $\alpha$ -オレフィンの結晶性単独重合体ないし共重合体などが挙げられる。

これらのポリオレフィン樹脂（D1）の融点は 250℃以下である。中でもポリエチレン、ポリプロピレンが好ましく、特にポリプロピレンが好ましい。

なお、本発明に係る第4に係る架橋可能なゴム組成物中に発泡剤を配合する場合、ポリオレフィン樹脂（D1）としては、炭素原子数 3 ～ 8 の  $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性  $\alpha$ -オレフィン単独重合体または共重合体、好ましくはポリプロピレンは、ビカット軟化点が 130℃以上、好ましくは 140℃以上であることが望ましい。

本発明においては、ポリオレフィン樹脂（D1）とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とのブレンド比率〔（D1）／（A）〕は、5／95～50／50、好ましくは 10／90～40／60である。この範囲内でポリオレフィン樹脂（D1）を用いれば、ゴム弾性を保つことができる。

ポリエチレンなどのポリオレフィン樹脂（D 1）は、補強剤、充填剤に対し、カーボンブラック並の製品硬度をアップさせる効果を持つとともに、加工温度でのコンパウンドの粘度を下げ、加工性を向上させる効果を持つ配合材として使用される。

また、ポリプロピレンについては、その配合量がポリプロピレンとエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）との合計量 100 重量部に対して 50 重量部以下であるとき、得られるコンパウンドは、共重合体ゴム（A）相が海となり、ポリプロピレン相が島となる、いわゆる海島構造になる。このポリプロピレンの島相は補強剤の役目を果たすとともに、融点以上の温度では溶融してコンパウンド粘度を下げ、流動性を向上させる効果がある。

本発明においては、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とポリオレフィン樹脂（D 1）を混ぜる方法としては、ゴム混練機として通常使用されるバンバリーミキサー、インターナルミキサー、ニーダー、オープンロールなどを用いて、ポリオレフィン樹脂（D 1）の融点以上で混練する方法でも構わないが、ポリオレフィン樹脂（D 1）の混練不良物が異物となる可能性が高いので、WO 97/02316 公報に記載の方法〔押出機内でエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）とポリオレフィン樹脂（D 1）を十分に溶融させ、ポリオレフィン樹脂（D 1）がエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）中にミクロ分散するまでブレンドする方法〕で行なう方が好ましい。



### ポリオレフィン樹脂 (D 2)

本発明に係る架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物においては、必要に応じて、ポリオレフィン樹脂 (D 2) を使用してもよい。ポリオレフィン樹脂 (D 2) は、架橋・発泡させるときに熔融する融点を持つ樹脂を選択することが好ましい。このポリオレフィン樹脂 (D 2) は、架橋・発泡する際に熔融しコンパウンド粘度を低下させる効果を持つため、発泡性が向上する、発泡状態が安定するなどの長所を持つ。

このようなポリオレフィン樹脂 (D 2) としては、具体的には、高密度ポリエチレン (HDPE)、中密度ポリエチレン (MDPE)、低密度ポリエチレン (LDPE)、直鎖状低密度ポリエチレン (LLDPE) 等のエチレン単独重合体 (ポリエチレン) ないしエチレンと炭素原子数 3 ~ 20、好ましくは 3 ~ 8 の  $\alpha$ -オレフィンとからなる結晶性エチレン・ $\alpha$ -オレフィン共重合体；

プロピレン単独重合体、プロピレンブロック共重合体、プロピレンランダム共重合体等のポリプロピレン；

プロピレン、1-ブテン、4-メチル-1-ペンテン、1-ヘキセン、1-ヘプテン、1-オクテン等の炭素原子数 3 ~ 20、好ましくは 3 ~ 8 の  $\alpha$ -オレフィンの結晶性単独重合体ないし共重合体などが挙げられる。

これらのポリオレフィン樹脂 (D 2) の融点は 250℃ 以下である。中でもポリエチレン、ポリプロピレンが好ましく、特にポリエチレンが好ましい。

なお、本発明に係るゴム組成物中に発泡剤 (G) を配合する場合、

ポリオレフィン樹脂（D 2）としては、炭素原子数 3 ～ 8 の  $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性  $\alpha$ -オレフィン単独重合体または共重合体、好ましくはポリプロピレンは、ビカット軟化点が 130℃以上、好ましくは 140℃以上であることが望ましい。

本発明においては、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とポリオレフィン樹脂（D 2）とのブレンド比率〔（A）／（D 2）〕は、5／95 ～ 50／50、好ましくは 10／90 ～ 40／60 である。この範囲内でポリオレフィン樹脂（D 2）を用いれば、ゴム弾性を保つことができる。

#### 触媒（E）

本発明で任意成分として用いられる触媒（E）は、付加反応触媒であり、上記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）成分のアルケニル基と、SiH基含有化合物

（B）、（B 1）の SiH 基との付加反応（アルケンのヒドロシリル化反応）を促進するものであれば特に制限はなく、たとえば白金系触媒、パラジウム系触媒、ロジウム系触媒等の白金族元素よりなる付加反応触媒（周期律表 8 族金属、8 族金属錯体、8 族金属化合物等の 8 族金属系触媒）を挙げることができ、中でも、白金系触媒が好ましい。

白金系触媒は、通常、付加硬化型の硬化に使用される公知のものでよく、たとえば米国特許第 2,970,150 号明細書に記載の微粉末金属白金触媒、米国特許第 2,823,218 号明細書に記載の塩化白金酸触媒、米国特許第 3,159,601 号公報明細書

および米国特許第 1 5 9, 6 6 2 号明細書に記載の白金と炭化水素との錯化合物、米国特許第 3, 5 1 6, 9 4 6 号明細書に記載の塩化白金酸とオレフィンとの錯化合物、米国特許第 3, 7 7 5, 4 5 2 号明細書および米国特許第 3, 8 1 4, 7 8 0 号明細書に記載の白金とビニルシロキサンとの錯化合物などが挙げられる。より具体的には、白金の単体（白金黒）、塩化白金酸、白金－オレフィン錯体、白金－アルコール錯体、あるいはアルミナ、シリカ等の担体に白金を担持させたものなどが挙げられる。

上記パラジウム系触媒は、パラジウム、パラジウム化合物、塩化パラジウム酸等からなり、また、上記ロジウム系触媒は、ロジウム、ロジウム化合物、塩化ロジウム酸等からなる。

上記以外の触媒（E）としては、ルイス酸、コバルトカルボニルなどが挙げられる。

触媒（E）は、Pt 金属として、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））に対して、0.1～100,000 重量 ppm、通常 0.1～10,000 重量 ppm、好ましくは 1～1,000 重量 ppm、さらに好ましくは 4.1～500 重量 ppm、特に好ましくは 5～100 重量 ppm の割合で用いられる。

上記範囲内の割合で触媒（E）を用いると、架橋密度が適度で強度特性および伸び特性に優れる架橋ゴム成形体を形成できるゴム組成物が得られる。100,000 重量 ppm を超える割合で触媒（E）を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

なお、本発明においては、上記触媒（E）を含まないゴム組成物の未架橋ゴム成形体に、光、 $\gamma$ 線、電子線等を照射して架橋ゴム成形体を得ることもできる。

また、本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用およびゴムロール用ゴム組成物においては、白金族金属系触媒（E1）、中でも、白金または白金化合物が好ましい。触媒の添加量は、付加反応を促進できればよく、通常、白金系金属量に換算して1ppm～1重量%の範囲で使用されるが、好ましくは10～100ppmの範囲が適当である。1ppm以上である理由は、1ppm未満であると付加反応が十分促進されず、硬化、発泡が不十分であり、一方、1重量%以下である理由は、これより多く加えても、反応性に対する影響も少なく、また不経済であるからである。

また、上記の触媒のほかに硬化速度を調整する目的で、付加架橋制御剤を使用してもよい。具体的には、エチニルシクロヘキサノールやテトラシクロメチルビニルポリシロキサンなどが挙げられる。

#### 反応抑制剤（F）

本発明で触媒（E）とともに任意成分として用いられる反応抑制剤（F）としては、ベンゾトリアゾール、エチニル基含有アルコール（たとえばエチニルシクロヘキサノール等）、アクリロニトリル、アミド化合物（たとえばN,N-ジアリルアセトアミド、N,N-ジアリルベンズアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-o-フタル酸ジアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-m-フタル酸ジアミド、N,N,N',N'-テトラアリル-p-フタル酸ジアミド等）、イオウ、リン、窒素、アミン化合

物、イオウ化合物、リン化合物、スズ、スズ化合物、テトラメチルテトラビニルシクロテトラシロキサン、ヒドロパーオキシド等の有機過酸化物などが挙げられる。

反応抑制剤（F）は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））100重量部に対して、0～50重量部、通常0.0001～50重量部、好ましくは0.0001～30重量部、より好ましくは0.0001～20重量部、さらに好ましくは0.0001～10重量部、特に好ましくは0.0001～5重量部の割合で用いられる。

50重量部以下の割合で反応抑制剤（F）を用いると、架橋スピードが速く、架橋ゴム成形体の生産性に優れたゴム組成物が得られる。50重量部を超える割合で反応抑制剤（F）を用いると、コスト的に不利になるので好ましくない。

#### 発泡剤（G）

本発明で任意成分として用いられる発泡剤（G）としては、具体的には、下記の発泡剤を例示することができるが、発泡剤を使用しなくてもSiH基含有化合物の配合量を調整することにより発泡させることもできる。これは、配合剤、たとえばカーボンブラックやシリカなどの表面に存在するOH基とSiH基が脱水素反応を起こすことを利用したものである。このため、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）の架橋に関与する脂肪族不飽和基に対するSiH基の割合をSiH基／脂肪族不飽和

基（モル比）で1以上である必要がある。好ましくは1.5以上20以下である。

このSiH基／脂肪族不飽和基（モル比）をこのような範囲内に調整すると、架橋に関与しない余剰なSiH基含有化合物（B）が脱水素反応を起こすため発泡体を得られる。したがって、発泡体を調製する場合には、カーボンブラック、シリカあるいはステアリン酸などのOH基の存在が必須となる。

発泡倍率、吸水率などを調整するためには、上記反応を利用するよりも、下記の発泡剤および発泡助剤を使用した方が良く、目的とする発泡体を得やすい。

発泡剤（G）としては、具体的には、重炭酸ナトリウム、炭酸ナトリウム、重炭酸アンモニウム、炭酸アンモニウム、亜硝酸アンモニウム等の無機発泡剤；

N,N'-ジメチル-N,N'-ジニトロソテレフタルアミド、N,N'-ジニトロソペンタメチレンテトラミン等のニトロソ化合物；

アゾジカルボンアミド、アゾビスイソブチロニトリル、アゾシクロヘキシルニトリル、アゾジアミノベンゼン、バリウムアゾジカルボキシレート等のアゾ化合物；

ベンゼンスルホニルヒドラジド、トルエンスルホニルヒドラジド、p,p'-オキシビス（ベンゼンスルホニルヒドラジド）、ジフェニルスルホン-3,3'-ジスルホニルヒドラジド等のスルホニルヒドラジド化合物；

カルシウムアジド、4,4-ジフェニルジスルホニルアジド、p-トルエンスルホニルアジド等のアジド化合物などが挙げられる。

これらの発泡剤は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））100重量部に対して、0.5～30重量部、好ましくは1～20重量部の割合で用いられる。上記のような割合で発泡剤を用いると、見かけ比重0.03～0.8 g/cm<sup>3</sup>の発泡体を製造することができるが、要求される物性値に応じて適宜最適量を決定することが望ましい。

また、発泡剤としてプラスチック微小中空体を使用することができる。かかるプラスチック微小中空体は熱により膨張することの特徴としている。この微小中空体の外殻となるプラスチックとしては、ゴム組成物の硬化温度に合わせて軟化温度が適当な範囲内にあるものを選択すればよい。

#### 発泡助剤（H）

本発明においては、必要に応じて、発泡剤（G）とともに発泡助剤（H）を使用してもよい。発泡助剤（H）は、発泡剤（G）の分解温度の低下、分解促進、気泡の均一化などの作用をする。

このような発泡助剤（H）としては、サリチル酸、フタル酸、ステアリン酸、しゅう酸等の有機酸、尿素またはその誘導体などが挙げられる。

これらの発泡助剤（H）は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）100重量部に対して、0～30重量部、好ましくは0.1～15重量部、さらに好ましくは0.5～10重量部の割合で用いられるが、要求される物性値に応じて

適宜最適量を決定することが望ましい。

たとえば、これらの発泡助剤（H）は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））100重量部に対して、0.01～10重量部、好ましくは0.1～5重量部の割合で用いられる。

### オルガノポリシロキサン（I）

本発明に係る架橋可能な建築用ガスケット用およびゴムロール用ゴム組成物で用いられるオルガノポリシロキサン（I）は、下記平均組成式（1）で示されるものである。



上記式（1）における $\text{R}^1$ は、非置換または置換の一価炭化水素基を表わし、通常炭素数1～10、特に1～8の基で、具体的には、メチル基、エチル基、プロピル基、ブチル基、ヘキシル基、オクチル基等のアルキル基、シクロペンチル基、シクロヘキシル基等のシクロアルキル基、ビニル基、アリル基、プロペニル基等のアルケニル基、シクロアルケニル基、フェニル基、トリル基等のアリール基、ベンジル基、フェニルエチル基等のアラルキル基、あるいはこれらの基の水素原子の一部または全部が塩素原子、フッ素原子、シアノ基等の有機基で置換されたハロゲン化炭化水素基、シアノ化炭化水素基などが例示されるが、特に一般的には該オルガノポリシロキサンの主鎖がジメチルシロキサン単位からなる基、あるいはこのジメチルポリシロキサンの主鎖の一部にフェニル基、ビニル基、3,3,3-



トリフルオロプロピル基等を有するジフェニルシロキサン単位、メチルビニルシロキサン単位、メチル-3,3,3-トリフルオロプロピルシロキサン単位等を導入した基などが好適である。この場合、オルガノポリシロキサン（I）は、1分子中に2個以上のアルケニル基、シクロアルケニル基等の脂肪族不飽和基を有するものが好ましく、 $R^1$  中 0.01～20モル%、特に0.02～10モル%が、かかる脂肪族不飽和基、特にビニル基であることが好ましい。この脂肪族不飽和基は、分子鎖末端でも、分子鎖の途中でも、その両方にあってもよいが、少なくとも分子鎖末端にあることが好ましい。なお、 $n$  は 1.95～2.05 の正数である。

本発明で用いられるオルガノポリシロキサン（I）としては、たとえば分子鎖末端がトリメチルシリル基、ジメチルフェニルシリル基、ジメチルヒドロキシシリル基、ジメチルビニルシリル基、トリビニルシリル基等で封鎖されたものを挙げることができる。本発明に用いるオルガノポリシロキサン（I）として、特に好ましいものは、メチルビニルポリシロキサン、メチルフェニルビニルポリシロキサン、メチルトリフルオロプロピルビニルポリシロキサンなどを挙げることができる。このようなオルガノポリシロキサン（I）は、たとえば、オルガノハロゲノシランの1種または2種以上を（共）加水分解縮合することにより、あるいは環状ポリシロキサン（シロキサンの3量体あるいは4量体など）をアルカリ性または酸性の触媒を用いて開環重合することによって得ることができる。これらは、基本的に直鎖状のジオルガノポリシロキサンであるが、分子構造の異なる2種または3種以上の混合物であってもよい。なお、上記オ

ルガノポリシロキサン（I）の粘度は、25℃で100センチストークス（cSt）以上が好ましく、特に好ましくは100,000～100,000,000cStである。オルガノポリシロキサン（I）の重合度は100以上が好ましく、特に好ましくは3,000～20,000である。

本発明においては、ゴム成分として、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とオルガノポリシロキサン（I）とは、重量比で、100：0～5：95の割合、より好ましくは100：0～60：40、さらに好ましくは100：0～70：30の割合で混合したものを使用する。

#### その他の成分

本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、未架橋のままでも用いることができるが、架橋ゴム成形体あるいは架橋ゴム発泡成形体のような架橋物として用いた場合に最もその特性を発揮することができる。

本発明に係る架橋可能なゴム組成物中に、意図する架橋物の用途等に応じて、従来公知のゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤、老化防止剤、加工助剤、架橋促進剤、有機過酸化物、架橋助剤、着色剤、分散剤、難燃剤、導電性材料などの添加剤を、本発明の目的を損なわない範囲で配合することができる。

上記ゴム補強剤は、架橋ゴムの引張強度、引き裂き強度、耐摩耗性などの機械的性質を高める効果がある。このようなゴム補強剤としては、具体的には、SRF、GPF、FEF、HAF、ISAF、

S A F、F T、M T等のカーボンプラック、シランカップリング剤などにより表面処理が施されているこれらのカーボンプラック、微粉ケイ酸、シリカなどが挙げられる。

シリカの具体例としては、煙霧質シリカ、沈降性シリカなどが挙げられる。これらのシリカは、ヘキサメチルジシラザン、クロロシラン、アルコキシシラン等の反応性シランあるいは低分子量のシロキサン等で表面処理されていてもよい。また、これらシリカの比表面積（B E D 法）は、好ましくは $50 \text{ m}^2/\text{g}$ 以上、より好ましくは $100 \sim 400 \text{ m}^2/\text{g}$ である。

これらのゴム補強剤の種類および配合量は、その用途により適宜選択できるが、ゴム補強剤の配合量は通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））100重量部に対して、最大300重量部、好ましくは最大200重量部である。

上記無機充填剤としては、具体的には、軽質炭酸カルシウム、重質炭酸カルシウム、タルク、クレーなどが挙げられる。

これらの無機充填剤の種類および配合量は、その用途により適宜選択できるが、無機充填剤の配合量は通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）（およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C））100重量部に対して、最大300重量部、好ましくは最大200重量部である。

上記軟化剤としては、通常ゴムに使用される軟化剤を用いることができる。

具体的には、プロセスオイル、潤滑油、パラフィン、流動パラフ

イン、石油アスファルト、ワセリン等の石油系軟化剤；

コールタール、コールタールピッチ等のコールタール系軟化剤；

ヒマシ油、アマニ油、ナタネ油、ヤシ油等の脂肪油系軟化剤；

トール油；

サブ；

蜜ロウ、カルナウバロウ、ラノリン等のロウ類；

リシノール酸、パルミチン酸、ステアリン酸バリウム、ステアリン酸カルシウム、ラウリン酸亜鉛等の脂肪酸および脂肪酸塩；

石油樹脂、アタクチックポリプロピレン、クマロンインデン樹脂等の合成高分子物質を挙げることができる。中でも石油系軟化剤が好ましく用いられ、特にプロセスオイルが好ましく用いられる。

これらの軟化剤の配合量は、架橋物の用途により適宜選択される。

上記老化防止剤としては、たとえばアミン系、ヒンダードフェノール系、またはイオウ系老化防止剤などが挙げられるが、これらの老化防止剤は、上述したように、本発明の目的を損なわない範囲で用いられる。

本発明で用いられるアミン系老化防止剤としては、ジフェニルアミン類、フェニレンジアミン類などが挙げられる。

ジフェニルアミン類としては、具体的には、 $p$ -( $p$ -トルエン・スルホニルアミド)-ジフェニルアミン、 $4,4'$ -( $\alpha, \alpha$ -ジメチルベンジル)ジフェニルアミン、 $4,4'$ -ジオクチル・ジフェニルアミン、ジフェニルアミンとアセトンとの高温反応生成物、ジフェニルアミンとアセトンとの低温反応生成物、ジフェニルアミンとアニリンとアセトンとの低温反応物、ジフェニルアミンとジイソブチレンとの

反応生成物、オクチル化ジフェニルアミン、ジオクチル化ジフェニルアミン、p, p' -ジオクチル・ジフェニルアミン、アルキル化ジフェニルアミンなどが挙げられる。

フェニレンジアミン類としては、具体的には、N, N' - ジフェニル - p - フェニレンジアミン、n - イソプロピル - N' - フェニル - p - フェニレンジアミン、N, N' - ジ - 2 - ナフチル - p - フェニレンジアミン、N - シクロヘキシル - N' - フェニル - p - フェニレンジアミン、N - フェニル - N' - (3 - メタクリロイルオキシ - 2 - ヒドロキシプロピル) - p - フェニレンジアミン、N, N' - ビス (1 - メチルヘプチル) - p - フェニレンジアミン、N, N' - ビス (1, 4 - ジメチルペンチル) - p - フェニレンジアミン、N, N' - ビス (1 - エチル - 3 - メチルペンチル) - p - フェニレンジアミン、N - (1, 3 - ジメチルブチル) - N' - フェニル - p - フェニレンジアミン、フェニルヘキシル - p - フェニレンジアミン、フェニルオクチル - p - フェニレンジアミン等の p - フェニレンジアミン類などが挙げられる。

これらの中でも、特に4, 4' - ( $\alpha$ ,  $\alpha$  - ジメチルベンジル) ジフェニルアミン、N, N' - ジ - 2 - ナフチル - p - フェニレンジアミンが好ましい。

これらの化合物は、単独で、あるいは2種以上組み合わせて用いることができる。

本発明で用いられるヒンダードフェノール系老化防止剤としては、具体的には

(1) 1, 1, 3 - トリス - (2 - メチル - 4 - ヒドロキシ - 5 - t - ブチルフェニル) ブタン、

- (2) 4,4'-ブチリデンビス-(3-メチル-6-t-ブチルフェノール)、
- (3) 2,2-チオビス(4-メチル-6-t-ブチルフェノール)、
- (4) 7-オクタデシル-3-(4'-ヒドロキシ-3',5'-ジ-t-ブチルフェニル)プロピオネート、
- (5) テトラキス-[メチレン-3-(3',5'-ジ-t-ブチル-4'-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]メタン、
- (6) ペンタエリスリトール-テトラキス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (7) トリエチレングリコール-ビス[3-(3-t-ブチル-5-メチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (8) 1,6-ヘキサンジオール-ビス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (9) 2,4-ビス(n-オクチルチオ)-6-(4-ヒドロキシ-3,5-ジ-t-ブチルアニリノ)-1,3,5-トリアジン、
- (10) トリス-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル)-イソシアヌレート、
- (11) 2,2-チオ-ジエチレンビス[3-(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)プロピオネート]、
- (12) N,N'-ヘキサメチレンビス(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシ)-ヒドロシンナアミド、
- (13) 2,4-ビス[(オクチルチオ)メチル]-o-クレゾール、
- (14) 3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシベンジル-ホスホネート-ジエチルエステル、
- (15) テトラキス[メチレン(3,5-ジ-t-ブチル-4-ヒドロキシヒ

ドロシンナメイト) ] メタン、

(16) オクタデシル-3-(3,5-ジ-*t*-ブチル-4-ヒドロキシフェニル)  
) プロピオン酸エステル、

(17) 3,9-ビス [2- {3- (3-*t*-ブチル-4-ヒドロキシ-5-メチルフェニル)  
プロピオニルオキシ} -1,1-ジメチルエチル] -2,4-8,10-  
テトラオキサスピロ [5,5] ウンデカン

などを挙げるることができる。中でも、特に (5)、(17) のフェノール化合物が好ましい。

本発明で用いられるイオウ系老化防止剤としては、通常ゴムに使用されるイオウ系老化防止剤が用いられる。

具体的には、2-メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾール、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルイミダゾールの亜鉛塩等のイミダゾール系老化防止剤；

ジミリスチルチオジプロピオネート、ジラウリルチオジプロピオネート、ジステアリルチオジプロピオネート、ジトリデシルチオジプロピオネート、ペンタエリスリトール-テトラキス- ( $\beta$ -ラウリル-チオプロピオネート) 等の脂肪族チオエーテル系老化防止剤などを挙げるることができる。これらの中でも、特に2-メルカプトベンゾイミダゾール、2-メルカプトベンゾイミダゾールの亜鉛塩、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾール、2-メルカプトメチルベンゾイミダゾールの亜鉛塩、ペンタエリスリトール-テトラキス- ( $\beta$ -ラウリル-チオプロピオネート) が好ましい。

上記の加工助剤としては、通常のゴムの加工に使用される化合物

を使用することができる。具体的には、リシノール酸、ステアリン酸、パルチミン酸、ラウリン酸等の高級脂肪酸；ステアリン酸バリウム、ステアリン酸亜鉛、ステアリン酸カルシウム等の高級脂肪酸の塩；リシノール酸、ステアリン酸、パルチミン酸、ラウリン酸等の高級脂肪酸のエステル類などが挙げられる。

このような加工助剤は、通常、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）100重量部に対して、10重量部以下、好ましくは5重量部以下の割合で用いられるが、要求される物性値に応じて適宜最適量を決定することが望ましい。

本発明においては、上述した触媒（E）の他に有機過酸化物を使用して、付加架橋とラジカル架橋の両方を行なってもよい。有機過酸化物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）100重量部に対し、0.1～10重量部程度の割合で用いられる。有機過酸化物としては、ゴムの架橋の際に通常使用されている従来公知の有機過酸化物を使用することができる。

また、有機過酸化物を使用するときは、架橋助剤を併用することが好ましい。

架橋助剤としては、具体的には、イオウ；p-キノンジオキシム等のキノンジオキシム系化合物；ポリエチレングリコールジメタクリレート等のメタクリレート系化合物；ジアリルフタレート、トリアリルシアヌレート等のアリル系化合物；マレイミド系化合物；ジビニルベンゼンなどが挙げられる。このような架橋助剤は、使用する有機過酸化物1モルに対して0.5～2モル、好ましくは約等モルの量で用いられる。



また、本発明に係る架橋可能なゴム組成物中に、本発明の目的を損なわない範囲で、公知の他のゴムとブレンドして用いることができる。

このような他のゴムとしては、天然ゴム（NR）、イソプレンゴム（IR）などのイソプレン系ゴム、ブタジエンゴム（BR）、スチレン-ブタジエンゴム（SBR）、アクリロニトリル-ブタジエンゴム（NBR）、クロロプレンゴム（CR）などの共役ジエン系ゴムを挙げることができる。

さらに従来公知のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン系共重合体ゴムを用いることもでき、たとえばエチレン・プロピレンランダム共重合体（EPR）、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）以外のエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・ポリエン共重合体（たとえばEPDMなど）を用いることができる。

上記導電性材料としては、たとえば本発明に係るゴムロールのゴム材料自身が体積抵抗率が $1 \times 10^{10} \Omega \cdot m$ 以下となるものであれば、その種類、配合量は制限されないが、導電性カーボンブラック、導電性炭素繊維、導電性亜鉛華、導電性酸化チタン等の1種または2種以上を併用することが好ましい。

### ゴム組成物およびその用途

本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、自動車用ウェザーストリップ；自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース；自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム；伝動ベルト、搬送用ベルト；自動車用カップ・シール材、産業機械

用シール材；自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジまたは他の発泡体；被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品；OA機器用ロール、工業用ロール；家庭用ゴム製品などの製造の際に好適に用いられる。

上記自動車用ウェザーストリップとしては、たとえばドアウェザーストリップ、トランクウェザーストリップ、ラゲージウェザーストリップ、ルーフサイドレールウェザーストリップ、スライドドアウェザーストリップ、ベンチレータウェザーストリップ、スライディンググループパネルウェザーストリップ、フロントウインドウェザーストリップ、リヤウインドウェザーストリップ、クォーターウインドウェザーストリップ、ロックピラーウェザーストリップ、ドアガラスアウナーウェザーストリップ、ドアガラスインナーウェザーストリップ、ダムウインドシールド、クラスランチャネル、ドアミラー用ブラケット、シールヘッドランプ、シールカウルトップなどが挙げられる。

上記自動車用ホースとしては、たとえばブレーキホース、ラジエーターホース、ヒーターホース、エアークリーナーホースなどが挙げられる。

上記自動車用防振ゴムとしては、たとえばエンジンマウント、液封エンジンマウント、ダンパープーリ、チェーンダンパー、キャブレターマウント、トーショナルダンパー、ストラットマウント、ラバーブッシュ、バンパゴム、ヘルパーゴム、スプリングシート、ショックアブソーバー、空気ばね、ボディマウント、バンパガード、マフラーサポート、ゴムカップリング、センターベアリングサポー

ト、クラッチ用ゴム、デフマウント、サスペンションブッシュ、すべりブッシュ、クッションストラットバー、ストッパ、ハンドルダンパー、ラジエターサポーター、マフラーハンガーなどが挙げられる。

上記鉄道用防振ゴムとしては、たとえばスラブマット、バラスマット、軌道マットなどが挙げられる。

上記産業機械用防振ゴムとしては、たとえばエキスパンションジョイント、フレキシブルジョイント、ブッシュ、マウントなどが挙げられる。

上記伝動ベルトとしては、たとえばVベルト、平ベルト、歯付きベルトなどが挙げられる。

上記搬送用ベルトとしては、たとえば軽搬送用ベルト、円筒形ベルト、ラフトップベルト、フランジ付き搬送用ベルト、U型ガイド付き搬送用ベルト、Vガイド付き搬送用ベルトなどが挙げられる。

上記自動車用カップ・シール材としては、たとえばマスタシリンダーピストンカップ、ホイールシリンダーピストンカップ、等速ジョイントブーツ、ピンブーツ、ダストカバー、ピストンシール、パッキン、Oリング、ダイヤフラムなどが挙げられる。

上記産業機械用シール材としては、たとえばコンデンサーパッキン、Oリング、パッキンなどが挙げられる。

上記自動車用ウェザーストリップスポンジとしては、たとえばドアウェザーストリップスポンジ、ボンネットウェザーストリップスポンジ、トランクルームウェザーストリップスポンジ、サンルーフウェザーストリップスポンジ、ベンチレーターウェザーストリッ

プスポンジ、コーナースポンジなどが挙げられる。

上記建築用シールスポンジとしては、たとえばガスケット、エアータイト、目地材、戸当たり部のシールスポンジなどが挙げられる。

上記他の発泡体としては、たとえばホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジ、インシュレーションパイプなどが挙げられる。

上記OA機器用ロールとしては、たとえば帯電ロール、転写ロール、現像ロール、給紙ロールなどが挙げられる。

上記工業用ロールとしては、たとえば製鉄用ロール、製紙用ロール、印刷用電線ロールなどが挙げられる。

上記家庭用ゴム製品としては、たとえば雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテックス製品、ゴルフボールなどが挙げられる。

また、本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、常温での架橋が可能であり、また、反応射出成形（RIM）用に好適に用いられる。さらに、熱可塑性エラストマーの製造の際に用いることができるし、エンジニアリングプラスチックの改質にも用いることができる。

本発明に係る自動車用ウェザーストリップ、ホース（自動車用ホース、送水用ホース、ガス用ホース）、防振ゴム（自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴム、建築用免震ゴム）、ベルト（伝動ベルト、搬送用ベルト）、シール材（自動車用カップ・シール材、産業機械用シール材）、発泡体（自動車用ウェザーストリップスポンジ、建築用シールスポンジおよび他の発泡体）、被覆電線、電線ジョイント、電気絶縁部品、半導電ゴム部品、OA機器用ロール、工業用ロールおよび家庭用ゴム製品は、前述した、本発

明に係る架橋可能なゴム組成物からなる。

### ゴム組成物およびその架橋ゴム成形体の調製

上述したように、本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、未架橋のままでも用いることもできるが、架橋ゴム成形体あるいは架橋ゴム発泡成形体のような架橋物として用いた場合に最もその特性を発揮することができる。

本発明に係る架橋可能なゴム組成物から架橋物を製造するには、通常一般のゴムを加硫（架橋）するときと同様に、未架橋の配合ゴムを一度調製し、次いで、この配合ゴムを意図する形状に成形した後、架橋を行えばよい。

架橋方法としては、架橋剤（S i H基含有化合物（B））を使用して加熱する方法、または光、 $\gamma$ 線、電子線照射による方法のどちらを採用してもよい。

まず、本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、たとえば次のような方法で調製される。

すなわち、本発明に係る架橋可能なゴム組成物、たとえば本発明に係る第5の架橋可能なゴム組成物は、バンバリーミキサー、ニーダー、インターミックスのようなインターナルミキサー（密閉式混合機）類により、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）、アルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）、および必要に応じてゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などの添加剤を好ましくは80～170℃の温度で3～10分間混練した後、オープンロールのようなロール類、あるいはニーダーを使

用して、S i H基含有化合物（B）、および必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）、加硫促進剤、架橋助剤、発泡剤（G）、発泡助剤（H）を追加混合し、好ましくはロール温度80℃以下で1～30分間混練した後、分出しすることにより調製することができる。

本発明においては、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）と、とゴム補強剤、無機充填剤等とは高温で混練りすることができるが、S i H基含有化合物（B）と触媒（E）とは同時に高温で混練りすると、架橋（スコーチ）してしまうことがあるため、S i H基含有化合物（B）と触媒（E）とを同時に添加する場合は、80℃以下で混練りすることが好ましい。S i H基含有化合物（B）と触媒（E）のうち、一方の成分を添加する場合は80℃を超える高温でも混練りすることができる。なお、混練りによる発熱に対して、冷却水を使用することも場合によっては好ましい。

また、インターナルミキサー類での混練温度が低い場合には、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびアルケニル基含有オルガノポリシロキサン（C）と、S i H基含有化合物（B）、ゴム補強剤、無機充填剤、軟化剤などとともに、老化防止剤、着色剤、分散剤、難燃剤、発泡剤（G）などを同時に混練してもよい。

本発明に係る他のゴム組成物も、上記調製法に準じて調製することができる。

上記のようにして調製された、本発明に係る架橋可能なゴム組成物は、押出成形機、カレンダーロール、プレス、インジェクション成形機、トランスファー成形機などを用いる種々の成形法より、意図する形状に成形され、成形と同時にまたは成型物を加硫槽内に導入し、架橋することができる。120～270℃の温度で1～30分間加熱するか、あるいは光、 $\gamma$ 線、電子線を照射することにより架橋物が得られる。この架橋の段階は金型を用いてもよいし、また金型を用いないで架橋を実施してもよい。金型を用いない場合は成形、架橋の工程は通常連続的に実施される。加硫槽における加熱方法としては、熱空気、ガラスビーズ流動床、UHF（極超短波電磁波）、スチームなどの加熱槽を用いることができる。

意図する形状に成形してから架橋を行なういわゆる非動的架橋の場合、酸素の存在下で架橋が可能であること、特に上記熱空気等により架橋できることは、特に有益である。酸素の存在下で架橋を行なうことが可能であれば、架橋槽を密閉状態とし、かつ酸素を排除する必要が無く、装置の簡略化、工程の短縮化が可能となるからである。このような利点は、押出成形された架橋成形体を生産する場合に特に顕著となる。

また、分子量の低いエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）を用いる場合には、ゴム（A）が液体状態にあるため、液体の状態でSiH基含有化合物（B）を混合し、必要に応じて触媒（E）、反応抑制剤（F）、発泡剤（G）、発泡助剤（H）を混合し、意図する形状の金型に流し室温で架橋させることができる。

## 実施例

以下、本発明を実施例により説明するが、本発明は、これら実施例に何ら限定されるものではない。

なお実施例、比較例で用いた共重合体ゴムの組成、ヨウ素価、極限粘度 $[\eta]$ 、分子量分布 $(M_w/M_n)$ 、 $r_2/r_1$ 、有効網目鎖密度 $(\nu)$ 、 $r_2/r_1$ と有効網目鎖密度（架橋密度の指標）との関係、分岐指数は、次のような方法で測定ないし計算により求めた。

### (1) 共重合体ゴムの組成

共重合体ゴムの組成は $^{13}\text{C}$ -NMR法で測定した。

### (2) 共重合体ゴムのヨウ素価

共重合体ゴムのヨウ素価は、滴定法により求めた。

### (3) 極限粘度 $[\eta]$

共重合体ゴムの極限粘度 $[\eta]$ は、 $135^\circ\text{C}$ デカリン中で測定した。

### (4) 分子量分布 $(M_w/M_n)$

共重合体ゴムの分子量分布は、GPCにより求めた重量平均分子量 $(M_w)$ と数平均分子量 $(M_n)$ との比 $(M_w/M_n)$ で表わした。GPCには、カラムに東ソー（株）製のGMH-HT、GMH-HTLを用い、溶媒にはオルソジクロロベンゼンを用いた。

### (5) $r_2/r_1$

共重合体ゴムの $100^\circ\text{C}$ でのメルトフローカーブを求め、ずり応力 $0.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$ を示すときのずり速度 $r_1$ とずり応力 $2.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$ を示すときのずり速度 $r_2$ との比 $(r_2/r_1)$ を求めた。



$$L/D = 60 \text{ mm} / 3 \text{ mm}$$

(6) 有効網目鎖密度 ( $\nu$ )

J I S K 6258 (1993年) に従い、トルエンに  $37^{\circ}\text{C}$   $\times$  72 時間浸漬させ、Flory-Rehnerの式より有効網目鎖密度を算出した。

$$\nu \text{ (個/cm}^3\text{)} = \frac{v_R + \ln(1 - v_R) + \mu v_R^2}{-V_0(v_R^{1/3} - v_R/2)}$$

$v_R$  : 膨潤した架橋ゴム中における膨潤した純ゴムの容積 (純ゴム容積 + 吸収した溶剤の容積) に対する純ゴムの容積分率

$\mu$  : ゴム-溶剤間の相互作用定数 = 0.49

$V_0$  : 溶剤の分子容

$\nu$  (個/cm<sup>3</sup>) : 有効網目鎖密度。純ゴム 1 cm<sup>3</sup> 中の有効網目鎖の数。

サンプルの作製 : 共重合体ゴム 100 g に対し、ジクミルパーオキサイド 0.01 モルを添加し、混練温度  $50^{\circ}\text{C}$  で 8 インチロールオープンロールを用いて、日本ゴム協会標準規格 (S R I S) に記載の方法により混練を行ない、得られた混練物を  $170^{\circ}\text{C}$  で 10 分間プレス架橋してサンプルを作製した。

(7)  $r_2/r_1$  と有効網目鎖密度 (架橋密度の指標) との関係

$\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1)/\nu$  を計算により求めた。

#### (8) 分岐指数

長鎖分岐を有しないEPR（分子量の異なる4サンプル）について動的粘弾性試験機を用いて複素粘性率 $\eta^*$ の周波数分散を測定した。

0.01 rad/sec と 8 rad/sec のときの複素粘性率 $\eta^*$ を求め、複素粘性率 $\eta_{1L}^*(0.01 \text{ rad/sec})$ を縦軸に、複素粘性率 $\eta_{2L}^*(8 \text{ rad/sec})$ を横軸にプロットし、基準ラインを作成し、そのラインの延長線上にある

$\eta_{2L}^* = 1 \times 10^3 / \text{Pa} \cdot \text{s}$  のときの $\eta_{1L0}^*$ を測定した。

次に、対象サンプルについても同様に、0.01 rad/sec と 8 rad/sec のときの複素粘性率 $\eta^*$ を求め、複素粘性率 $\eta_{1B}^*(0.01 \text{ rad/sec})$ を縦軸に、複素粘性率 $\eta_{2B}^*(8 \text{ rad/sec})$ を横軸にプロットする。このプロットは基準ラインよりも大きな値となり、長鎖分岐が多いほど基準ラインよりも大きく離れていく。

次に、このプロットの上を通るように基準ラインを平行移動させ、複素粘性率 $\eta_{2B}^* = 1 \times 10^3 / \text{Pa} \cdot \text{s}$ との交点 $\eta_{1B0}^*$ を測定した。

上記のようにして測定した $\eta_{1L0}^*$ および $\eta_{1B0}^*$ の値を下式に適用し、分岐指数を算出した。

$$\text{分岐指数} = (\log \eta_{1L0}^* - \log \eta_{1B0}^*) \times 10$$

上記測定条件は、次の通りである。

・基準サンプル：4種類のEPR

三井化学（株）製、タフマーP-0280、P-0480、

P-0680、P-0880（商品名）

- ・動的粘弾性試験機（RDS）：Rheometrics 社
- ・サンプル：2mmシートを直径25mmの円状に打ち抜いて使用。
- ・温度：190°C
- ・歪み率：1%
- ・周波数依存：0.001～500 rad/sec

### 製造例 1

[エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の製造]

攪拌羽根を備えた実質内容積100リットルのステンレス製重合器（攪拌回転数=250 rpm）を用いて、連続的にエチレンとプロピレンと5-ビニル-2-ノルボルネンとの三元共重合を行なった。重合器側部より液相へ毎時ヘキサンを60リットル、エチレンを3.7 kg、プロピレンを8.0 kg、5-ビニル-2-ノルボルネンを480 gの速度で、また水素を50リットル、触媒としてVOCl<sub>3</sub>を48ミリモル、Al(Et)<sub>2</sub>Clを240ミリモル、Al(Et)<sub>1.5</sub>Cl<sub>1.5</sub>を48ミリモルの速度で連続的に供給した。

以上に述べたような条件で共重合反応を行なうと、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）が均一な溶液状態で得られた。

その後、重合器下部から連続的に抜き出した重合溶液中に少量のメタノールを添加して重合反応を停止させ、スチームストリッピング処理にて重合体を溶媒から分離したのち、55°Cで48時間真空乾燥を行なった。

上記のようにして得られたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の物性を表1に示す。

#### 製造例 2 ~ 3

製造例1において、重合条件を表1の通りに変えることにより、異なる性状のエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2)、エチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を得た。得られた共重合体ゴム (A-2)、(A-3) の物性を表1に示す。

#### 製造例 4

[エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-4) の製造]

攪拌羽根を備えた実質内容積100リットルのステンレス製重合器 (攪拌回転数=250rpm) を用いて、連続的にエチレンとプロピレンと5-ビニル-2-ノルボルネンと5-エチリデン-2-ノルボルネンの四元共重合を行なった。重合器側部より液相へ毎時ヘキサンを60リットル、エチレンを3.0kg、プロピレンを8.5kg、5-ビニル-2-ノルボルネンを370g、5-エチリデン-2-ノルボルネンを470gの速度で、また水素を50Nリットル、触媒として $\text{VOCl}_3$ を90ミリモル、 $\text{Al}(\text{Et})_2\text{Cl}$ を420ミリモル、 $\text{Al}(\text{Et})_{1.5}\text{Cl}_{1.5}$ を120ミリモルの速度で連続的に供給した。

以上に述べたような条件で共重合反応を行なうと、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-4) が均一な溶液状態で得られた。

その後、重合器下部から連続的に抜き出した重合溶液中に少量のメタノールを添加して重合反応を停止させ、スチームストリッピング処理にて重合体を溶媒から分離したのち、55℃で48時間真空乾燥を行なった。

上記のようにして得られたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-4)の物性を表1に示す。

#### 製造例 5 ~ 7

製造例1において、重合条件を表1の通りに変えることにより、異なる性状のエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合体ゴム(A-5)、エチレン・1-ブテン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-6)、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-7)を得た。得られた共重合体ゴム(A-5)、(A-6)、(A-7)の物性を表1に示す。

#### 製造例 8

[エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-8)の製造]

攪拌羽根を備えた実質内容積100リットルのステンレス製重合器(攪拌回転数=250rpm)を用いて、連続的にエチレンとプロピレンと5-ビニル-2-ノルボルネンとの三元共重合を行なった。重合器側部より液相へ毎時ヘキサンを60リットル、エチレンを3.8kg、プロピレンを9.2kg、5-ビニル-2-ノルボルネンを120gの速度で、また、水素を30リットル、触媒としてVOC

1<sub>3</sub> を 18 ミリモル、Al(Et)<sub>2</sub>Cl を 90 ミリモル、Al(Et)<sub>1.5</sub>Cl<sub>1.5</sub> を 18 ミリモルの速度で連続的に供給した。

以上に述べたような条件で共重合反応を行なうと、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-8)が均一な溶液状態で得られた。

その後、重合器下部から連続的に抜き出した重合溶液中に少量のメタノールを添加して重合反応を停止させ、スチームストリッピング処理にて重合体を溶媒から分離したのち、55℃で48時間真空乾燥を行なった。

上記のようにして得られたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-8)の物性を表1に示す。

#### 製造例 9

製造例 8 において、重合条件を表 1 の通りに変えることにより、異なる性状のエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-9)を得た。得られた共重合体ゴム(A-9)の物性を表 1 に示す。

表 1

共重合体 ゴム	触媒	Al/V	Al(Et) <sub>2</sub> Cl/ Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	重合温度 (°C)	重合圧力 (kgf/cm <sup>2</sup> )	触媒 フィード (mmol/h)	ジエン	フィード (g/h)	$\alpha$ -オレフィン
A-1	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	5/1	40	6.5	48	VNB	480	7° 00' 00"
A-2	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	5/1	45	6.5	65	ENB	350	7° 00' 00"
A-3	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	45	6.3	75	DCPD	480	7° 00' 00"
A-4	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	40	7.3	90	VNB ENB	370 470	7° 00' 00"
A-5	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	7/2	40	7.2	90	VNB	550	7° 00' 00"
A-6	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	—	35	4.9	14	VNB	280	1-7° 00'
A-7	V0(OEt)Cl <sub>2</sub> -Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	7	—	40	7.2	10	VNB	150	7° 00' 00"
A-8	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	5/1	40	6.8	18	VNB	120	7° 00' 00"
A-9	VOC1 <sub>3</sub> -Al(Et) <sub>2</sub> Cl/Al(Et) <sub>1.5</sub> Cl <sub>1.5</sub>	6	1/1	40	7.4	38	VNB	240	7° 00' 00"

表 1 (続き)

共重合体 ゴム	エチン/ $\alpha$ -オレフィン 74-ド (kg/h)	H <sub>2</sub> (NL/h)	収量 (kg/h)	エチン含量 (mol%)	$[\eta]$ (dl/g)	IV (g/100g)	$\gamma_2/\gamma_1$	有効網目鎖密度 $\nu$ ( $\times 10^{19}$ 個/cm <sup>3</sup> )	$\text{Log}(\gamma_2/\gamma_1)$ / $\nu$	Mw/Mn	分岐指数
A-1	3.7/8.0	50	4.5	75	1.83	10.9	145.1	31.8	0.068	28.2	13.2
A-2	3.2/9.5	7	4.8	66	1.98	13	27.7	14.2	0.102	5.1	3.5
A-3	3.2/9.3	12	4.5	66	1.85	12	54.6	14.0	0.124	9.5	8.4
A-4	3.0/8.5	50	4.5	70	1.0	13(VNB) 21(ENB)	—	—	—	45	11.0
A-5	2.8/11.5	40	4.1	50	1.1	15	—	—	—	40	11.5
A-6	3.9/24	0	2.0	81	2.62	5.4	63.3	28.9	0.062	5.1	18.2
A-7	3.8/7.7	42	3.9	78	3.2	4.5	—	—	—	10.4	20.3
A-8	3.8/9.2	30	4.4	74	1.97	3.1	53.1	19.1	0.090	11.3	10.2
A-9	3.3/17	10	1.2	68	3.10	6.0	—	—	—	10.5	18.5

(註1) VNB: 5-ヒニル-2-ノルボルネン、ENB: 5-エチルデン-2-ノルボルネン、DCPD: ジシクロペンタジエン

(註2) Et: エトキシ基

(註3) IV: ヨウ素価



## 実施例 A 1

まず、表 1 に示すエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部を 8 インチロール (前ロールの表面温度 40℃、後ロールの表面温度 40℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、メチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] を 2 重量部、塩化白金酸 (C) を 300 ppm となるように加えて 10 分間混練した後、シート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋シートを調製した、この未架橋シートを 230℃ 雰囲気 of HAV (ホットエアー架橋槽) に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて引張試験、耐熱老化性試験、耐傷付き性試験および圧縮永久歪み試験を下記の方法に従って行なった。

### (1) 引張試験

JIS K 6251 に従って、測定温度 23℃、引張速度 500 mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度  $T_B$  と伸び  $E_B$  を測定した。

### (2) 耐熱老化性試験

JIS K 6257 に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを 150℃ のオープン中に 72 時間入れて老化させた後、測定温度 23℃、引張速度 500 mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ保持率  $A_R(T_B)$  と、伸び保持率  $A_R(E_B)$  を算出した。

### (3) 耐傷付き性試験

H A V (ホットエアー架橋槽) より取り出した直後の架橋シート表面をH Bの鉛筆でひっかき、その傷つき状態を肉眼で観察し、耐傷付き性の評価を4段階で行なった。

#### <耐傷付き性の4段階評価>

A : 表面に傷が全く付かないもの

B : 表面にわずかに傷が付くもの

C : 傷が付くもの

D : 傷が著しく激しいもの

### (4) 圧縮永久歪み試験

J I S K 6 2 5 0 に従い、作製した架橋シートを積層し、J I S K 6 2 6 2 に準拠して圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は1 5 0 ℃×2 2 h r s である。

これらの結果を表2に示す。

また、この実施例A 1においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業(株)製、商品名 L-3 1] の代わりに、K F-9 9 [商品名、信越化学工業(株)製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

#### 比較例A 1

実施例A 1において、実施例A 1で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例A 1と同様に行なった。結果を表2に示す。

また、この比較例 A 1 においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] の代わりに、KF-99 [商品名、信越化学工業 (株) 製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

#### 比較例 A 2

実施例 A 1 において、実施例 A 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 A 1 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

また、この比較例 A 2 においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] の代わりに、KF-99 [商品名、信越化学工業 (株) 製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

#### 比較例 A 3

実施例 A 1 において、メチル水素ポリシロキサン (B) と塩化白金酸 (C) の代わりに、ジクミルパオキサイド 100% 濃度品を 2.7 重量部加えた以外は、実施例 A 1 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

#### 比較例 A 4

実施例 A 1 において、メチル水素ポリシロキサン (B) と塩化白金酸 (C) の代わりに、イオウ 1.5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー M] 0.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルファイド [三新化学工業 (株)

）製、商品名 サンセラー T T ] 1. 0 重量部、亜鉛華 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部を加えた以外は、実施例 A 1 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

#### 比較例 A 5

比較例 A 4 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、比較例 A 4 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

#### 実施例 A 2

エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、カーボンブラック [東海カーボン (株) 製、商品名 シースト™ 3] 50 重量部および軟化剤 [出光興産 (株) 製、商品名 ダイアナプロセスオイル™ PW-380] 10 重量部を容量 1. 7 リットルのバンバリーミキサー [(株) 神戸製鋼所製] で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、カーボンブラック、軟化剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間を混練を行ない、約 130℃で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70%で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 160 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロール

の回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、メチル水素ポリシロキサン (B) 5 重量部、塩化白金酸 1 重量部を加えて 10 分間混練した後、シート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴムシートを調製した、この未架橋シートを 230℃ 雰囲気の HAV (ホットエアー架橋槽) に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて、引張試験、耐熱老化性試験、耐傷付き性試験および圧縮永久歪み試験を上述した方法に従って行なった。さらに濁度測定も下記の測定方法に従って行なった。

#### <濁度の測定方法>

上記架橋シート (厚さ 2 mm) から 2 cm × 2 cm 角のシートを打ち抜き、室温のキシレン 10 g 中に 48 時間浸漬した後、その残液の濁度を測定した。測定装置は、日本精密光学 (株) 製の SEP-PT-501 (商品名) を用い、積分球式光電光度法で測定を行なった。測定セルは光路長 10 mm のものを、光源には特殊タングステン電球を用いた。

濁度標準液として、JIS-K0101、9.1 (1) (d) 規定のカオリン標準液 [100 度 (カオリン)] を用い、これと等しい散乱光強度のときの濁度を 100 ppm とした。

これらの結果を第 2 表に示す。

また、この実施例 A2 においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] の代わりに、KF-99 [商品名、信越化学工業 (株) 製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

### 比較例 A 6

実施例 A 2 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 A 2 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

また、この比較例 A 6 においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] の代わりに、KF-99 [商品名、信越化学工業 (株) 製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

### 比較例 A 7

実施例 A 2 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 A 2 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

また、この比較例 A 7 においてメチル水素ポリシロキサン (B) [日本ユニカー工業 (株) 製、商品名 L-31] の代わりに、KF-99 [商品名、信越化学工業 (株) 製] を用いた場合も、同様の結果が得られた。

### 比較例 A 8

実施例 A 2 において、メチル水素ポリシロキサン (B) と塩化白金酸 (C) の代わりに、ジクミルパーオキサイド 100% 濃度品を 2.7 重量部加えた以外は、実施例 A 2 と同様に行なった。結果を

表 2 に示す。

#### 比較例 A 9

実施例 A 2 において、メチル水素ポリシロキサン (B) と塩化白金酸 (C) の代わりに、イオウ 1.5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー M] 0.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルファイド [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー T T] 1.0 重量部、亜鉛華 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部を加えた以外は、実施例 A 2 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

#### 比較例 A 10

比較例 A 9 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、比較例 A 9 と同様に行なった。結果を表 2 に示す。

#### 実施例 A 3

実施例 A 2 において、未架橋シートを 250℃ 雰囲気の HAV に 10 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した以外は、実施例 A 2 と同様に行なった。

結果を表 2 に示す。

#### 比較例 A 11

比較例 A 6 において、未架橋シートを 250℃ 雰囲気の HAV に 10 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した以外は、比較例 A 6 と同様に行なった。

結果を表 2 に示す。

比較例 A 1 2

比較例 A 7 において、未架橋シートを 2 5 0 ℃ 雰囲気の H A V に 1 0 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した以外は、比較例 A 7 と同様に行なった。

結果を表 2 に示す。



表 2

組成物	実施例		比較例					比較例					
	A 1	A 2	A 1	A 2	A 3	A 4	A 5	A 2	A 6	A 7	A 8	A 9	A 10
[重量部]													
共重合体ゴム(A-1)	100				100	100					100	100	
共重合体ゴム(A-2)		100					100		100				100
共重合体ゴム(A-3)				100						100			
メチル水素ポリシロキサン(B)	2	2	2	2					5	5			
塩化白金酸(C)	0.5	0.5	0.5	0.5					1	1			
ジクミルパーオキシサイド					2.7						2.7		
イオウ						1.5	1.5					1.5	1.5
サンセラーM						0.5	0.5					0.5	0.5
サンセラー-TT						1	1					1	1
亜鉛華						5	5					5	5
ステアリン酸						1	1					1	1
シースト3									50	50	50	50	50
PW-380									10	10	10	10	10
架橋ゴム物性													
CS(150℃×22h) [%]	10		架橋	架橋	18	82	76		架橋	架橋	26	88	79
耐熱老化性(150℃×72H)			しない	しない					しない	しない			
A <sub>R</sub> (T <sub>B</sub> ) [%]	95				82	24	20				75	20	19
A <sub>R</sub> (E <sub>B</sub> ) [%]	93				68	24	19				82	35	28
T <sub>B</sub> [MPa]	2.3				2.1	2.2	2.5				11.5	8.5	15.4
E <sub>B</sub> [%]	190				210	210	250				310	340	210
耐傷付き性	A	D	D	D	B~C	A	A		D	D	D	A	A
濁度 [ppm]											5.6	0.2	0.2

表 2 (続き)

	実施例	比 較 例	
	A 3	A 11	A 12
熱風加硫(HAV)ゴムの特性			
C S (150℃、22hrs) [%]	16	78	68
A <sub>R</sub> (T <sub>B</sub> ) [%]	93	75	76
A <sub>R</sub> (E <sub>B</sub> ) [%]	92	42	38
T <sub>B</sub> [MPa]	13.1	8.5	9.2
E <sub>B</sub> [%]	200	750	620
耐傷付き性	A	C	C
濁 度 [ppm]	0.2	2.6	1.9

(註) 熱風加硫条件：250℃、10分

実施例 A 4

エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム [EPT (1) ; エチレン/プロピレン (モル比) = 68 / 32、ヨウ素価 = 10、135℃のデカリン中で測定した極限粘度  $[\eta] = 2.1 \text{ dl/g}$ ] 100重量部と、比表面積が  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  のシリカアエロジル200 [商品名、日本アエロジル(株)製] 30重量部を2本ロールを用いて混練し、配合ゴムコンパウンド (1) を作製した。

次いで、この配合ゴムコンパウンド (1) に、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{-Si}(\text{OSi}(\text{CH}_3)_2\text{H})_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.

0.6重量部、塩化白金酸濃度5重量%のイソプロピルアルコール溶液0.05重量部を2本ロールにて添加、混合し、得られたゴムコンパウンド(2)から、165℃で10分間圧縮成形を行なって厚さ2mmのシートを成形した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入りゴムコンパウンド(2)から2本ロールにて2mm厚のシートを成形した後、150℃の熱風乾燥機に入れて20分間熱風架橋(HAV; hot air vulcanization)させて厚さ2mmのシートを作製した。

上記のようにして得られた2種類のシートについて、力学的特性をJIS K-6249に準じて測定した。また架橋速度の目安として「 $T_{10}$ 」を150℃、12分の条件にてレオメーターで測定した。「 $T_{10}$ 」とは、所定の時間ゴムを架橋させた時に最終トルク値を100%とし、ゴム材料が架橋し始めて10%のトルク値に到達した時の時間を示し、「 $T_{10}$ 」が短いほど架橋速度が速いことを示す。さらに、熱風架橋させたシートについて耐傷付き性試験を行った。これらの結果を表3に示す。

#### 実施例 A 5

実施例 A 4において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム[EPT(1)]の代わりに、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合体ゴム[EPT(2); エチレン/プロピレン(モル比)=62/38、ヨウ素価=15、135℃のデカリン中で測定した極限粘度 $[\eta]=1.15 \text{ dl/g}$ ]を用いた以外は、実施例 A 4と同様にして、厚さ2mmの導電性シートを2種類作製した。

これらのシートについて、実施例 A 4 と同様の試験を行なった。  
その結果を表 3 に示す。

#### 実施例 A 6

エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム [E P T (2)] 100 重量部と、アセチレンブラック [商品名 デンカブラック、電気化学工業 (株) 製] 50 重量部を 2 本ロールを用いて混練し、配合ゴムコンパウンド (3) を得た。

次いで、この配合ゴムコンパウンド (3) に、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部、塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.05 重量部を 2 本ロールにて添加、混合し、得られたゴムコンパウンド (4) から、165℃で10分間圧縮成形を行なって厚さ 2 mm の導電性シートを成形した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入りゴムコンパウンド (3) から 2 本ロールにて 2 mm 厚のシートを成形した後、150℃の熱風乾燥機に入れて 20 分間熱風架橋 (H A V) させて厚さ 2 mm の導電性シートを作製した。

これらのシートについて、実施例 A 4 と同様の試験を行なった。  
その結果を表 3 に示す。

#### 比較例 A 1 3

実施例 A 4 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム [E P T (1)] の代わりに、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合

体ゴム [E P T (3) ; エチレン／プロピレン (モル比) = 63 / 37、ヨウ素価 = 22、135℃のデカリン中で測定した極限粘度  $[\eta] = 1.05 \text{ dl/g}$ ] を用いた以外は、実施例 A 3 と同様にして、厚さ 2 mm のシートを 2 種類作製した。

これらのシートについて、実施例 A 4 と同様の試験を行なった。その結果を表 3 に示す。

#### 比較例 A 1 4

実施例 A 6 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム [E P T (2)] の代わりに、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体 [E P T (3)] を用いた以外は、実施例 A 6 と同様にして、厚さ 2 mm の導電性シートを 2 種類作製した。

これらのシートについて、実施例 A 6 と同様の試験を行なった。その結果を表 3 に示す。

表 3

組成物	実 施 例			比 較 例	
	A 4	A 5	A 6	A 13	A 14
[重量部]					
EPT (1)	100				
EPT (2)		100	100		
EPT (3)				100	100
シリカアエロジル200	30	30		30	
デンカブラック			50		50
オルガノハイドロジェン ポリシロキサン *1	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.05	0.05	0.05	0.05	0.05
エチニルシクロヘキサノール	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06
圧縮成形架橋ゴムの特性					
T <sub>10</sub> [分]	0.25	0.23	0.28	1.20	2.10
硬さ (デュロメーターA)	73	70	65	40	30
引張強さ [MPa]	12.0	10.0	7.3	3.5	2.0
伸び [%]	180	200	230	600*2	750*2
熱風加硫(HAV)ゴムの特性					
硬さ (デュロメーターA)	71	68	63	完全 硬化 せず	完全 硬化 せず
引張強さ [MPa]	10.5	9.5	7.0		
伸び [%]	180	210	230		
耐傷付き性	A	A	A	C	D

\* 1 :  $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示される。

\* 2 : 硬化が不完全で伸びが大きくなっている。

### 実施例 B 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-4） 100 重量部と、比表面積が  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  のシリカアエロジル 200 [商品名、日本アエロジル（株）製] 30 重量部を 8 インチロール（前ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、後ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、前ロールの回転数  $16 \text{ rpm}$ 、後ロールの回転数  $18 \text{ rpm}$ ）で 10 分間混練し、配合ゴムコンパウンド（1）を作製した。

次いで、この配合ゴムコンパウンド（1）に、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{-Si}(\text{OSi}(\text{CH}_3)_2\text{H})_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部を加え、10 分間混練したのちに、塩化白金酸濃度 2 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.1 重量部を加え、8 インチロール（前ロールの表面温度  $40^\circ\text{C}$ 、後ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、前ロールの回転数  $16 \text{ rpm}$ 、後ロールの回転数  $18 \text{ rpm}$ ）にて添加、混合し、得られたゴムコンパウンド（2）から、 $140^\circ\text{C}$  で 10 分間圧縮成形を行なって厚さ 2 mm のシートを成形した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入りゴムコンパウンド（2）から 8 インチロール（前ロールの表面温度  $40^\circ\text{C}$ 、後ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、前ロールの回転数  $16 \text{ rpm}$ 、後ロールの回転数  $18 \text{ rpm}$ ）にて 2 mm 厚のシートを成形した後、50 トンプレス成形機を用いて  $40^\circ\text{C}$  で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋シートを調製した、この未架橋シートを  $200^\circ\text{C}$  雰囲気での HAV（ホットエアー加硫槽）に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて引張試験、耐熱老化性試験、耐傷付き性試験、圧縮永久歪み試験、接着性試験および劣化後の耐油性を下記の方法に従って行なった。

(1) 引張試験

実施例 A 1 で行なった引張試験と同じ。

(2) 耐熱老化性試験

実施例 A 1 で行なった耐熱老化性試験と同じ。

(3) 耐傷付き性試験

実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ。

(4) 圧縮永久歪み試験

実施例 A 1 で行なった圧縮永久歪む試験と同じ。

(5) 接着性試験

$$\text{接着性 (\%)} = (\text{接着強度} / \text{母材強度}) \times 100$$

・ 接着強度の測定

三井 E P T 4045 [商品名 ; 三井化学 (株) 製] を 100 重量部、シリカアエロジル 200 [日本アエロジル (株) 製] を 30 重量部、イオウを 1.5 重量部、加硫促進剤サンセラー M [商品名 ; 三新化学工業 (株) 製] 1 重量部、加硫促進剤サンセラー T T (三新化学工業 (株) 製) 1 重量部を 8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロールの回転数 16 r p m、後ロールの回転数 18 r p m) にて添加、混合し、得られたゴムコンパウンドから 170℃で 10 分間圧縮成形を行なって厚さ 2 mm のシートを成形した。この加硫シートを J I S K 6 2 5 0 に従って、打ち抜き刃を使用し J I S ダンベル状 3 号形に打ち抜



いた。

次いで、このダンベル状試験片（長さ100mm）を長さ方向の半分（50mm）に切断し、接着試験サンプル（A）とした。

次いで、上記のようにして得られたゴムコンパウンド（2）から、JIS 3号ダンベルの体積の60％に相当する量を秤量し、接着試験サンプル（B）とする。

次いで、JIS 3号ダンベル形状（厚さ2mm）の金型の左右対称に接着試験サンプル（A）（加硫シート）と接着試験サンプル（B）（未架橋ゴム）を入れ、100トンプレス機を用いて、140℃で10分間架橋し、ダンベル状 3号形の接着性試験サンプル（C）を得た。

このサンプル（C）をJIS K6251に従って引張強度を求め、これを接着強度とした。

#### ・母材強度の測定

上記のようにして得られたゴムコンパウンド（2）を100トンプレス機を用いて140℃で10分間架橋し、厚さ2mmの架橋ゴムシートを得た。

次いで、このサンプル（C）をJIS K6251に従って引張強度を求め、これを母材強度とした。

#### （6）劣化後の耐油性

劣化後の耐油性（％）＝老化後の質量変化率／老化前の質量変化率

先ほど得られたゴムコンパウンド（2）を100トンプレス機を用いて140℃で10分間架橋し、厚さ2mmの架橋ゴムシート（i）を得た。

次いで、J I S K 6 2 5 8に従い、試験用潤滑油N o 2油を用いて7 0℃で7 2時間浸漬した。浸漬後の質量 $W_1$ 、および浸漬前の質量 $W_0$ を測定し、老化前の質量変化率を求めた。

$$\text{老化前の質量変化率 (\%)} = W_1 / W_0 \times 100$$

次いで、架橋ゴムシート (i) をJ I S K 6 2 5 7に従い、15 0℃×7 2時間の老化試験を行ない、架橋ゴムシート (ii) を得た。

この架橋ゴムシート (ii) を用いて、前記同様に浸漬試験を行ない、老化後の質量変化率を求めた。

これらの結果を表4に示す。

#### 比較例 B 1

実施例 B 1 において、実施例 B 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-4) の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 B 1 と同様に行なった。結果を表4に示す。

#### 比較例 B 2

実施例 B 1 において、実施例 B 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-4) の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 B 1 と同様に行なった。結果を表4に示す。

#### 比較例 B 3

実施例 B 1 において、実施例 B 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-4）の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-5）を用いた以外は、実施例 B 1 と同様に行なった。結果を表 4 に示す。

表 4

	実施例	比較例		
	B 1	B 1	B 2	B 3
組成物 [重量部]				
共重合体ゴム (A-4)	100			
共重合体ゴム (A-2)		100		
共重合体ゴム (A-3)			100	
共重合体ゴム (A-5)				100
SiH基含有化合物 *1	1.5	1.5	1.5	1.5
塩化白金酸 2 重量%の IPA 溶液	0.1	0.1	0.1	0.1
エチニルシクロヘキサノール	0.06	0.06	0.06	0.06
シリカアエロジル 200	30	30	30	30
プレス成形架橋ゴムの特性				
接着性 [%]	72	75	67	54
劣化後の耐油性 [%]	30			55
熱風架橋 (H A V) ゴムの特性				
硬さ (デュロメーター A)	72			71
引張強さ T <sub>B</sub> [MPa]	10.3	架橋	架橋	10.3
伸び E <sub>B</sub> [%]	170	不十分	不十分	180
耐傷付き性	A	D	D	A
耐熱老化性				
A <sub>R</sub> (T <sub>B</sub> ) [%]	120	—	—	112
A <sub>R</sub> (E <sub>B</sub> ) [%]	50	—	—	62
圧縮永久歪み [%]	20	100	100	23

\* 1 :  $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン

### 実施例 C 1

まず、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) とポリエチレン (B-1) [三井化学 (株) 製、商品名 ウルトゼックス 20200J] を重量比率 [(B-1) / (A-1)] が 20 / 100 になるように押出機のスクリュー回転数と、計量器からのポリエチレン (B-1) 供給量をコントロールすることにより 2 軸混練押出機によって調整し、ブレンド物 (I) を得た。

得られたブレンド物 (I) 中におけるポリエチレン (B-1) の平均分散粒径を、電子顕微鏡 [商品名 H-8100 (200KV)、(株) 日立製作所製] を用いて、下記の要領で調整したサンプルについて測定したところ、平均分散粒径は 0.01  $\mu\text{m}$  以下であった。

#### <サンプルの調製>

上記ブレンド物 (I) のペレットをトリージングし、ミクロトームで 0.1  $\mu\text{m}$  以下の薄膜板を作製し、この薄膜片をルテニウム酸で染色した。次いで、この薄膜片にカーボンを蒸着して電子顕微鏡用サンプルを得た。

また、上記のようにして得られたブレンド物 (I) 120 重量部と、カーボンブラック [旭カーボン (株) 製、商品名 旭 #60G] 80 重量部、軟化剤 [出光興産 (株) 製、ダイアナプロセスオイル<sup>TM</sup> PW-380] 35 重量部、ステアリン酸 1 重量部および亜鉛華 1 号 5 重量部とを、容積 1.7 リットルのバンバリーミキサー [(株) 神戸製鋼所製、BB-2 形ミキサー] で混練した。

混練方法は、まずブレンド物（I）を30秒素練りし、次いで、カーボンブラック、軟化剤、ステアリン酸、亜鉛華1号を入れ2分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに1分間混練し、約110℃で排出し、ゴムコンパウンド（1）を得た。この混練は充填率70%で行なった。

次に、このゴムコンパウンド（1）241重量部を8インチロール（前ロールの表面温度40℃、後ロールの表面温度30℃、前ロールの回転数16rpm、後ロールの回転数18rpm）に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン3重量部、反応抑制剤としてエチニルシクロヘキサノール0.2重量部、塩化白金酸濃度2重量%のイソプロピルアルコール溶液0.3重量部を添加、10分間混合し、得られたゴムコンパウンド（2）から、140℃で10分間圧縮成形を行なって厚さ2mmのシートを成形した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入りゴムコンパウンド（2）から8インチロール（前ロールの表面温度40℃、後ロールの表面温度30℃、前ロールの回転数16rpm、後ロールの回転数18rpm）にて2mm厚のシートを成形した後、50トンプレス成形機を用いて40℃で6分間加圧し、厚み2mmの未架橋シートを調製した、この未架橋シートを200℃雰囲気のHAV（ホットエアー加熱槽）に5分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて引張試験、耐熱老化性試験、耐傷付き性試験、圧縮永久歪み試験および流動性試験を下記の方法に従って行なった。

(1) 引張試験

実施例 A 1 で行なった引張試験と同じ。

(2) 耐熱老化性試験

実施例 A 1 で行なった耐熱老化性試験と同じ。

(3) 耐傷付き性試験

実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ。

(4) 圧縮永久歪み試験

実施例 A 1 で行なった圧縮永久歪み試験と同じ。

(5) 流動性試験

架橋度測定機 [アルファテクノロジー アクイジッション Inc. 製、商品名 RHEOMETER MDR 2000] を用いて、最低トルク S 'MIN を測定した。測定温度は 140℃ である。

これらの結果を表 5 に示す。

実施例 C 2

実施例 C 1 において、ポリエチレン (B-1) 20 重量部の代わりに、ポリプロピレン (B-2) [(株) グランドポリマー製、商品名 F 3 3 7 D] 20 重量部を用いた以外は、実施例 C 1 と同様に行なった。

結果を表 5 に示す。

なお、得られたブレンド物 (II) 中におけるポリプロピレン (B-2) の平均分散粒径を、電子顕微鏡 [商品名 H-8100 (200KV)、(株) 日立製作所製] を用いて、上記要領で調製したサンプルについて測定したところ、平均分散粒径は 0.5  $\mu$ m、アスペクト比は 1.7 であった。

結果を表 5 に示す。

#### 比較例 C 1

実施例 C 2 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 C 2 と同様に行なった。

結果を表 5 に示す。

なお、得られたブレンド物 (III) 中におけるポリプロピレン (B-2) の平均分散粒径を、電子顕微鏡 [商品名 H-8100 (200KV)、(株) 日立製作所製] を用いて、上記要領で調製したサンプルについて測定したところ、平均分散粒径は  $0.6 \mu\text{m}$ 、アスペクト比は 1.6 であった。

#### 比較例 C 2

実施例 C 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用い、ポリエチレン (B-1) の代わりに、ポリプロピレン (B-2) を用いた以外は、実施例 C 1 と同様に行なった。

結果を表 5 に示す。

なお、得られたブレンド物 (IV) 中におけるポリプロピレン (B-2) の平均分散粒径を、電子顕微鏡 [商品名 H-8100 (200KV)、(株) 日立製作所製] を用いて、上記要領で調製したサンプルについて測定したところ、平均分散粒径は  $0.5 \mu\text{m}$ 、ア

スペクト比は 1. 8 であった。

### 比較例 C 3

実施例 C 1 において、ポリエチレン (B-1) を用いず、カーボンブラック [旭カーボン (株)、商品名 旭 # 5 0 G] の配合量を 1 0 0 重量部に変更した以外は、実施例 C 1 と同様に行なった。

結果を表 5 に示す。

### 比較例 C 4

実施例 C 2 において、実施例 C 2 で用いた架橋剤 (オルガノハイドロジェンポリシロキサン)、触媒 (塩化白金酸濃度 2 重量 % のイソプロピルアルコール溶液) および反応抑制剤 (エチニルシクロヘキサノール) の代わりに、イオウ 1. 5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー M] 0. 5 重量部およびテトラメチルチウラムジスルファイド [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー T T] 1. 0 重量部を用いた以外は、実施例 C 2 と同様に行なった。

結果を表 5 に示す。

### 比較例 C 5

実施例 C 2 において、実施例 C 2 で用いた架橋剤 (オルガノハイドロジェンポリシロキサン)、触媒 (塩化白金酸濃度 2 重量 % のイソプロピルアルコール溶液) および反応抑制剤 (エチニルシクロヘキサノール) の代わりに、ジクミルパーオキサイド [三井化学 (株) 製、商品名 三井 D C P 4 0 C] 3. 5 重量部を用い、かつ、亜鉛華 1 号とステアリン酸を用いなかった以外は、実施例 C 2 と同様に行なった。



結果を表 5 に示す。

表 5

組 成 物	実 施 例			比 較 例				
	C 1	C 2	C 1	C 2	C 3	C 4	C 5	
[重量部]								
共重合体ゴム(A-1)	100	100			100	100	100	
共重合体ゴム(A-2)			100					
共重合体ゴム(A-3)				100				
ポリエチレン(B-1)	20							
ポリプロピレン(B-2)		20	20	20		20	20	
SIH基含有化合物*1	3	3	3	3	3			
塩化白金酸2重量%のIPA溶液	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3			
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2			
ジクミルパーオキシサイド							3.5	
イオウ						1.5		
サセラーM						0.5		
サセラーTT						1.0		
亜鉛華1号	5	5	5	5	5	5		
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1		
カーボンブラック(旭#60G)	80	80	80	80	100	80	80	
軟化剤(PW-380)	35	35	35	35	35	35	35	
流動性								
架橋の最低トルクス', dN <sub>10</sub> (140℃)	1.5	1.4	架橋不十分	架橋不十分	2.2	加硫遅い	架橋遅い	
架橋ゴム物性								
C S (150℃×22h) [%]	41	35			32	72	25	
耐熱老化性 (150℃×72h)								
A <sub>R</sub> (T <sub>B</sub> ) [%]	115	121			128	34	121	
A <sub>R</sub> (E <sub>B</sub> ) [%]	62	56			59	21	52	
T <sub>B</sub> [MPa]	14.4	12.8			13.1	15.2	11.3	
E <sub>B</sub> [%]	190	170			160	250	190	
耐傷付き性	A	A	D	D	A	A	D	

\* 1 : C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>-Si(OSi(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>H)<sub>3</sub>

表 5 より明らかなように、ポリエチレンが配合されている実施例 C 1 およびポリプロピレンが配合されている実施例 C 2 は、ポリエチレン等のポリオレフィンが配合されていない比較例 C 3 に比べて、 $S'$  が小さく、粘度が下がっており、流動性が良好である。

#### 実施例 D 1

まず表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部と、比表面積が  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  のシリカアエロジル 200 [商品名、日本アエロジル (株) 製] 35 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、後ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、前ロールの回転数  $16 \text{ rpm}$ 、後ロールの回転数  $18 \text{ rpm}$ ) で 10 分間混練し、配合ゴムコンパウンド (1) を作製した。

次いで、メチル基とビニル基を有するポリシロキサン [平均重合度 8000 ; 両末端がジメチルビニルシリル基で封入されたビニル基含量 0.11 モル%] 100 重量部と、比表面積が  $200 \text{ m}^2/\text{g}$  のシリカアエロジル 200 [商品名、日本アエロジル (株) 製] 35 重量部と、ジメチルポリシロキサン [両末端がシラノール基で封入された平均重合度が 10] 1 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、後ロールの表面温度  $30^\circ\text{C}$ 、前ロールの回転数  $16 \text{ rpm}$ 、後ロールの回転数  $18 \text{ rpm}$ ) で 10 分間混練し、配合ゴムコンパウンド (2) を作製した。

次に、上記配合ゴムコンパウンド (1) 121.5 重量部と配合ゴムコンパウンド (2) 13.5 重量部を、8 インチロール (前ロ

ールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) で 10 分間混練し、配合ゴムコンパウンド (3) を作製した。

次いで、この配合ゴムコンパウンド (3) に、 $\text{C}_6\text{H}_5\text{-Si}(\text{OSi}(\text{CH}_3)_2\text{H})_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部を加えて 10 分間混練した後に、塩化白金酸濃度 2 重量 % のイソプロピルアルコール溶液 0.1 重量部を 8 インチロール (前ロールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) にて添加、5 分間混合し、得られたゴムコンパウンド (4) から、140℃で 10 分間圧縮成形を行なって厚さ 2 mm のシートを成形した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入りゴムコンパウンド (4) から 8 インチロール (前ロールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) にて 2 mm 厚のシートを成形した後、50 トンプレス成形機を用いて 40℃で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋シートを調製した、この未架橋シートを 200℃雰囲気の HAV (ホットエアー加硫槽) に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて引張試験、耐熱老化性試験、耐傷付き性試験、圧縮永久歪み試験および耐摩耗試験を下記の方法に従って行なった。

#### (1) 引張試験

実施例 A1 で行なった引張試験と同じ。

## (2) 耐熱老化性試験

実施例 A 1 で行なった耐熱老化性試験と同じ。

## (3) 耐傷付き性試験

実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ。

## (4) 圧縮永久歪み試験

実施例 A 1 で行なった圧縮永久歪み試験と同じ。

## (5) 耐摩耗試験

J I S K 6 2 6 4 に従い、テーバー摩耗試験を下記条件で行ない、摩耗量を測定した。

### <条件>

研磨砥石：H 2 2、J I S R 6 2 1 1 の 3 に規定する 1 号平形

試験時の荷重：2. 4 5 N

試験片の試験回数：1 0 0 0 回

試験片の厚さ：2. 5 mm

また、金型汚染性試験を以下の条件で行なった。すなわち、縦型射出成型機（松田製作所製 V I - 7 5 P）を用いて、ストローク 7. 7 mm、最大型締力：7 5 トン、架橋温度 1 6 0 ℃、架橋時間 1 0 0 秒で金型表面に汚染が発生するまでのショット数を測定した。このショット数を耐金型汚染性の指標とした。

これらの結果を表 6 に示す。

## 実施例 D 2

実施例 D 1 において、実施例 D 1 で用いたゴムコンパウンド（1）の配合量を 1 2 1. 5 重量部から 8 1 重量部に変更し、実施例 D 1 で用いたゴムコンパウンド（2）の配合量を 1 3. 5 重量部から

5 4 重量部変更した以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 実施例 D 3

実施例 D 1 において、実施例 D 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-5) を用いた以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 比較例 D 1

実施例 D 1 において、実施例 D 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 比較例 D 2

実施例 D 1 において、実施例 D 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 比較例 D 3

実施例 D 1 において、実施例 D 1 で用いたゴムコンパウンド (1) の配合量を 1 2 1. 5 重量部から 1 3 5 重量部に変更し、ゴムコンパウンド (2) の配合量を 1 3. 5 重量部から 0 重量部に変更し

た以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 比較例 D 4

実施例 D 1 において、 $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示される Si H 基含有化合物 1.5 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部および塩化白金酸濃度 2 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.1 重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド〔三井化学（株）製、商品名 三井 DCP-40C〕3.5 重量部を用いた以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

#### 比較例 D 5

実施例 D 1 において、 $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示される Si H 基含有化合物 1.5 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部および塩化白金酸濃度 2 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.1 重量部の代わりに、イオウ 1.5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー M〕0.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルファイド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー TT〕1.0 重量部を用いた以外は、実施例 D 1 と同様に行なった。結果を表 6 に示す。

表 6

組成物	実 施 例			比 較 例				
	D 1	D 2	D 3	D 1	D 2	D 3	D 4	D 5
[重量部]								
共重合体ゴム(A-1)	90	60				100	90	90
共重合体ゴム(A-5)			90					
共重合体ゴム(A-2)				90				
共重合体ゴム(A-3)					90			
ポリシロキサン	10	40	10	10	10		10	10
S I H基含有化合物	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5		
塩化白金酸2重量%のIPA溶液	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1	0.1		
エチニルシクロヘキサノール	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06	0.06		
ジケミルパーオキシサイド							3.5	
イオウ								1.5
サンセラーM								0.5
サンセラーTT								1
シリカ (アエロジル200)	35	35	35	35	35	35	35	35
耐金型汚染性 ショット数 [回]	120	250	105	架橋 不十分	架橋 不十分	52	95	105
架橋ゴム物性								
耐摩耗性 摩耗量 [g]	23	15	29			62	65	32
CS (150℃×22H) [%]	29	23	33			31	19	78
耐熱老化性 (150℃×72H)								
AR (TB) [%]	112	105	121			120	119	43
AR (EB) [%]	63	72	56			50	52	22
引張強さ TB [MPa]	12.4	10.8	10.4			12.2	11.3	13.4
伸び EB [%]	190	170	180			180	190	230
耐傷付き性	A	A	A	D	D	A	D	A



## [防振ゴム用ゴム組成物に関する実施例等]

実施例 E 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、カーボンブラック [旭カーボン (株) 製、商品名 旭 # 60 G] 60 重量部、軟化剤 [出光興産 (株) 製、商品名 ダイアナプロセスオイル™PW-380] 60 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部およびステアリン酸 1 重量部を、容量 1.7 リットルのバンバリーミキサー [(株) 神戸製鋼所製] で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、カーボンブラック、軟化剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間混練を行ない、約 165℃ で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 75% で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 226 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si-(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 3 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.3 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物をシート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴ

ムシートを調製した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、J S Rキュラストメーター3型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、 $160^{\circ}\text{C}$ の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値 $ML$ と最高値 $MH$ の差を $ME$ （ $=MH-ML$ ）とし、 $90\%ME$ に達する時間を「 $t_c(90)$ 」とした。

次に、上記未架橋ゴムシートを $200^{\circ}\text{C}$ 雰囲気のH A V（ホットエアー加硫槽）に5分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例A1で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で従って行なった。

また、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを150トンプレス成型機を用いて $140^{\circ}\text{C}$ で10分間加圧し、厚さ2mmの架橋シートを得た。得られた架橋シートについて引張試験、硬さ試験および耐熱老化性試験を下記の方法に従って行なった。

#### （1）引張試験

J I S K 6 2 5 1に従って、測定温度 $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度 $500\text{ mm/分}$ の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度 $T_B$ と伸び $E_B$ を測定した。

#### （2）硬さ試験

J I S K 6 2 5 3（デュロメーター タイプA）に準拠して、硬さ試験を行ない、硬さ $H_A$ を測定した。

#### （3）耐熱老化性試験

J I S K 6 2 5 7に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを $150^{\circ}\text{C}$ のオープン中に72時間入れて老化さ

せた後、測定温度 23℃、引張速度 500 mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ保持率  $A_R(T_B)$  と、伸び保持率  $A_R(E_B)$  を算出した。また、架橋シートを 150℃のオーブン中に 72 時間入れて老化させた後硬さ試験を行ない、加熱前の硬さ  $H_1$  と加熱後の硬さ  $H_2$  から、下記式のより硬さ変化  $A_H$  を算出した。

$$A_H = H_2 - H_1$$

さらに、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを 150 トンプレス成型機を用いて 140℃で 10 分間加圧し、厚さ 1 mm の架橋シートを得た。得られた架橋シートについて圧縮永久歪み試験および防振特性評価試験を下記の方法に従って行なった。

#### (1) 圧縮永久歪み試験

J I S K 6 2 6 2 (1993) に従い、圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は 150℃×22 hrs である。

#### (2) 防振特性評価試験

防振特性評価試験は、サイエンティフィック・ファー・イースト(株)製の粘弾性試験機(形式 R D S)を用いて、下記の条件で行ない、複素弾性率 ( $G^*$ ) と損失正接 ( $\tan \delta$ ) を測定し、これらをもって防振特性の評価を行なった。

#### <測定条件>

- 1) 温度: 25℃、2) 歪み: 1%、3) 周波数: 10 Hz、
- 4) 試験片の形状: 幅 10 mm×厚み 2 mm×長さ 30 mm

#### 実施例 E 2

実施例 E 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノル

ボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、エチレン・1-ブテン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-6）を用いた以外は、実施例E1と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は135℃であった。

結果を表7に示す。

### 実施例E3

実施例E1において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-7）を用いた以外は、実施例E1と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は140℃であった。結果を表7に示す。

### 比較例E1

実施例E1において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体（A-1）の代わりに、三井EPT4045〔商品名；三井化学（株）製のエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム〕を用い、SiH基含有化合物、塩化白金酸濃度5重量%のイソプロピルアルコール溶液およびエチニルシクロヘキサノールの代わりに、イオウ（加硫剤）0.5重量部、サンセラーM（商品名）〔加硫促進剤；三新化学工業（株）製〕3重量部、サンセラーBZ（商品名）〔加硫促進剤；三新化学工業（株）製〕1.5重量部、サンセラーTT（商品名）〔加硫促進剤；三新化学工業（株）製〕1.0重量部を用いた以外は、実施例E1と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーか

ら排出した際の混練物の温度は138℃であった。結果を表7に示す。

#### 比較例 E 2

実施例 E 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体 (A-1) の代わりに、三井 E P T 4 0 4 5 [商品名; 三井化学 (株) 製] を用い、SiH基含有化合物、塩化白金酸濃度5重量%のイソプロピルアルコール溶液およびエチニルシクロヘキサノールの代わりに、ジクミルパーオキサイド [D C P ; 日本油脂 (株) 製の架橋剤] 6.8重量部とトリアリルイソシアヌレート [T A I C ; 日本化成 (株) 製の架橋助剤] 0.5重量部を用いた以外は、実施例 E 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は142℃であった。

結果を表7に示す。

表 7

組成物	実施例 E 1	実施例 E 2	実施例 E 3	比較例 E 1	比較例 E 2
[重量部]					
共重合体ゴム(A-1)	100				
共重合体ゴム(A-6)		100			
共重合体ゴム(A-7)			100		
三井EPT4045				100	100
SiH基含有化合物 *1	3	3	3		
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.3	0.3	0.3		
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2		
DCP (100%)					6.8
TAIC					0.5
イオウ				0.5	
サンセラ-M				3	
サンセラ-BZ				1.5	
サンセラ-TT				1	
亜鉛華1号	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1
旭#60G	60	60	60	60	60
PW-380	60	60	60	60	60
t <sub>c</sub> (90)(at 160°C) [分]	1.5	0.5	1.4	17.2	8.3

\*1:  $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン

表 7 (続き)

	実施例 E 1	実施例 E 2	実施例 E 3	比較例 E 1	比較例 E 2
プレス架橋ゴムの物性					
$T_B$ [MPa]	13.5	14.5	17.5	16.5	13.5
$E_B$ [%]	350	300	270	450	380
$H_A$	50	50	50	51	53
耐熱老化性					
$A_R (T_B)$ [%]	80	76	77	35	28
$A_R (E_B)$ [%]	74	70	75	45	43
$A_H$	+5	+6	+5	+15	+18
圧縮永久歪み [%]	30	17	42	75	28
防振特性					
$G^*$ [ $\times 10^6$ dyn/cm <sup>2</sup> ]	1.9	1.8	1.8	2.0	2.4
$\tan \delta$ (at 25°C) ( $\times 10^{-2}$ )	8.2	7.5	11.3	13.5	12.1
熱風架橋(HAV)ゴムの特性 耐傷付き性					
	A	A	A	A	D

## 〔グラスラン用ゴム組成物に関する実施例等〕

実施例 F 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、カーボンブラック〔旭カーボン (株) 製、商品名 旭 # 60 G〕150 重量部、軟化剤〔出光興産 (株) 製、商品名 ダイアナプロセスオイル™ PW-380〕57 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部を容量 1.7 リットルのバンバリーミキサー〔(株) 神戸製鋼所製〕で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、カーボンブラック、軟化剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間を混練を行ない、約 165℃で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 75%で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 313 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 3 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.3 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物をシート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴム



シートを調製した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、J S Rキュラストメーター 3 型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、 $160^{\circ}\text{C}$ の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値  $M_L$  と最高値  $M_H$  の差を  $M_E$ （ $=M_H - M_L$ ）とし、 $90\% M_E$  に達する時間を  $t_c(90)$  とした。

次に、この未架橋ゴムシートを  $200^{\circ}\text{C}$  雰囲気の H A V（ホットエアー加硫槽）に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で行なった。

また、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを 150 トンプレス成型機を用いて  $140^{\circ}\text{C}$  で 10 分間加圧し、厚さ 2 mm の架橋シートを得た。得られた架橋シートについて引張試験および耐熱老化性試験を下記の方法に従って行なった。

#### （1）引張試験

J I S K 6 2 5 1 に従って、測定温度  $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度  $500\text{ mm/分}$  の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度  $T_B$  と伸び  $E_B$  を測定した。

#### （2）耐熱老化性試験

J I S K 6 2 5 7 に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを  $150^{\circ}\text{C}$  のオープン中に 72 時間入れて老化させた後、測定温度  $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度  $500\text{ mm/分}$  の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ保持率  $A_R(T_B)$  と、伸び保持率  $A_R(E_B)$  を算出した。

さらに、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを150ト  
ンプレス成型機を用いて140℃で10分間加圧し、厚さ1mmの  
架橋シートを得た。得られた架橋シートについて圧縮永久歪み試験  
およびブルーム試験を下記の方法に従って行なった。

(1) 圧縮永久歪み試験

J I S K 6 2 6 2 ( 1 9 9 3 ) に従い、圧縮永久歪み試験を行  
なった。この試験条件は150℃×22hrsである。

(2) ブルーム試験

製品が自動車に取り付けられた後、加硫剤等の影響で製品表面が  
変色する不具合が生じることがある。この状態となるかどうかを促  
進する試験として以下の方法を用いた。

70℃の温水（蒸留水）中に上記方法で得た1mm厚の加硫ゴム（  
架橋）シートを浸漬し、オープン中で24h放置後に取り出し、加  
硫（架橋）ゴム表面を観察した。オリジナルに比べて白化するかど  
うかを調査した。

これらの結果を表8に示す。

実施例 F 2

実施例 F 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノル  
ボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、エチレン・  
1-ブテン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-  
6）を用いた以外は、実施例 F 1 と同様に行なった。なお、バンバ  
リーミキサーから排出した際の混練物の温度は135℃であった。

結果を表8に示す。

実施例 F 3

実施例 F 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-7) を用いた以外は、実施例 F 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 143℃であった。

結果を表 8 に示す。

#### 比較例 F 1

実施例 F 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、三井 E P T 3090E [商品名；三井化学 (株) 製のエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム] を用い、SiH 基含有化合物、塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液およびエチニルシクロヘキサノールの代わりにイオウ (加硫剤) 1.5 重量部、サンセラー M (商品名) [加硫促進剤；三新化学工業 (株) 製] 0.5 重量部、サンセラー T T (商品名) [加硫促進剤；三新化学工業 (株) 製] 1.0 重量部を用いた以外は、実施例 F 1 と同様に行なった。

結果を表 8 に示す。

#### 比較例 F 2

実施例 F 1 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、三井 E P T 3090E [商品名；三井化学 (株) 製] を用い、SiH 基含有化合物、塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液およびエチニルシクロヘキサノールの代わりに、ジクミルパーオキシイ

ド〔DCP；日本油脂（株）製の架橋剤〕 11 重量部とトリアリル  
イソシアヌレート〔TAIC；日本化成（株）製の架橋助剤〕 4 重  
量部を用いた以外は、実施例 F 1 と同様に行なった。なお、バンバ  
リーミキサーから排出した際の混練物の温度は 141℃であった。

結果を表 8 に示す。

表 8

組成物	実施例 F 1	実施例 F 2	実施例 F 3	比較例 F 1	比較例 F 2
[重量部]					
共重合体ゴム(A-1)	100				
共重合体ゴム(A-6)		100			
共重合体ゴム(A-7)			100		
三井EPT3090E				100	100
SIH基含有化合物 *1	3	3	3		
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.3	0.3	0.3		
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2		
DCP (100%濃度品)					11
TAIC					4
イオウ				1.5	
サンセラーM				0.5	
サンセラーTT				1	
亜鉛華1号	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1
旭#60G	150	150	150	150	150
PW-380	57	57	57	57	57
t <sub>c</sub> (90)(at 160℃) [分]	1.5	0.5	1.4	17.2	8.3

\* 1 :  $\text{C}_6\text{H}_5\text{-Si}(\text{OSi}(\text{CH}_3)_2\text{H})_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシクロキサン

表 8 (続き)

	実施例 F 1	実施例 F 2	実施例 F 3	比較例 F 1	比較例 F 2
プレス架橋ゴムの物性					
T <sub>B</sub> [MPa]	8.9	10.5	11.5	11.6	9.5
E <sub>B</sub> [%]	300	310	290	320	270
耐熱老化性					
A <sub>R</sub> (T <sub>B</sub> ) [%]	75	78	77	32	28
A <sub>R</sub> (E <sub>B</sub> ) [%]	74	76	72	35	35
圧縮永久歪み [%]	39	25	50	85	40
熱風架橋 (H A V) ゴムの特性					
耐傷付き性	A	A	A	A	D
外観 (ブリード)	変化なし	変化なし	変化なし	白化	変化なし

### 実施例 G 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-8) 100 重量部、FEFカーボンブラック〔旭カーボン(株)製、商品名 旭#60G〕45 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部をブレーキリザバーホース配合で容量 1.7 リットルのバンバリーミキサー〔(株)神戸製鋼所製〕で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-8) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、FEFカーボンブラックを入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間混練を行ない、約 170℃で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70%で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 151 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 3 重量部、反応抑制剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.3 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物をシート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴムシートを調製した。

また上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安と

して「 $t_{c(90)}$ 」を、J S R キュラストメーター 3 型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、 $160^{\circ}\text{C}$ の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値  $M_L$  と最高値  $M_H$  の差を  $M_E (= M_H - M_L)$  とし、 $90\% M_E$  に達する時間を「 $t_{c(90)}$ 」とした。

次に、上記未架橋ゴムシートを  $200^{\circ}\text{C}$  雰囲気の H A V（ホットエアー加硫槽）に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で行なった。

また、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを 150 トンプレス成型機を用いて  $140^{\circ}\text{C}$  で 10 分間加圧し、厚さ 2 mm の架橋シートを得た。得られた架橋シートについて引張試験、硬さ試験、耐熱老化性試験および体積抵抗率試験を下記の方法に従って行なった。

#### （1）引張試験

J I S K 6 2 5 1 に従って、測定温度  $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度  $500 \text{ mm/分}$  の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度  $T_B$  と伸び  $E_B$  を測定した。

#### （2）硬さ試験

J I S K 6 2 5 3（デュロメーター タイプ A）に準拠して、硬さ試験を行ない、硬さ  $H_A$  を測定した。

#### （3）耐熱老化性試験

J I S K 6 2 5 7 に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを  $150^{\circ}\text{C}$  のオープン中に 72 時間入れて老化させた後、測定温度  $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度  $500 \text{ mm/分}$  の条件で引張試

験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ保持率  $A_R (T_B)$  と、伸び保持率  $A_R (E_B)$  を算出した。また、架橋シートを  $150^\circ\text{C}$  のオーブン中に  $72$  時間入れて老化させた後硬さ試験を行ない、加熱前の硬さ  $H_1$  と加熱後の硬さ  $H_2$  から、下記式より硬さ変化  $A_H$  を算出した。

$$A_H = H_2 - H_1$$

#### (4) 体積抵抗率試験

日本ゴム協会標準規格 (SRIS) 2304 (1971) に準拠して体積抵抗率試験を行ない、架橋シートの体積固有抵抗値を測定した。

さらにまた、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを  $150$  トンプレス成型機を用いて、 $140^\circ\text{C}$  で  $15$  分間加圧し、JIS

K6250 に基づいて作製した架橋シートについて圧縮永久歪み試験を下記の方法に従って行なった。

#### [圧縮永久歪み試験]

JIS K6262 (1993) に従い、圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は  $150^\circ\text{C} \times 22 \text{ hrs}$  である。

これらの結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 1

実施例 G 1 において、実施例 G 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-8) の代わりに、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合体ゴム [三井化学 (株) 製、商品名 EPT#3045] を用いた以外は、実施例 G 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキ



サーから排出した際の混練物の温度は 173℃であった。

結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 2

実施例 G 1 において、実施例 G 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-8) の代わりに、エチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム [三井化学 (株) 製、EPT#1045] 用いた以外は、実施例 G 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミサーから排出した際の混練物の温度は 171℃であった。

結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 3

比較例 G 1 において、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 3 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.2 重量部の代わりに、40% ジクミルパーキサイド [三井化学 (株) 製、商品名 三井DCP-40] 6 重量部、トリメチロールプロパントリメチルアクリレート [精工化学 (株) 製、商品名 ハイクロスM] 1.5 重量部、および 2-メルカプトベンゾイミダゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンドアントMB] 2.0 重量部を用いた以外は、比較例 G 1 と同様に行なった。なお、物性試験用架橋ゴムは 180℃・10 分加硫とした。

結果を表 9 に示す。

#### 実施例 G 2

実施例 G 1 において、実施例 G 1 のブレーキリザーバーホース配合

の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-9) 100 重量部、FEFカーボンブラック〔旭カーボン(株)製、商品名 旭#60G〕95 重量部、軟化剤〔出光興産(株)製、商品名 PW-380〕40 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部の自動車用水系ホース配合にした以外は、実施例 G 1 と同様にして混練を行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 165℃であった。以下、実施例 G 1 と同様に行なった。

結果を表 9 に示す。

#### 実施例 G 3

実施例 G 2 において、実施例 G 2 の自動車用水系ホース配合にて、亜鉛華 1 号を用いなかった以外は、実施例 G 2 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 167℃であった。

結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 4

実施例 G 2 において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-9) の代わりに、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2- ノルボルネン共重合体ゴム〔三井化学(株)製、商品名 EPT#3070〕を用いた以外は、実施例 G 2 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 166℃であった。

結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 5

比較例 G 4 おいて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される  $SiH$  基含有化合物 3 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.2 重量部の代わりに、イオウ 0.3 重量部、N-シクロヘキシル-2-ベンゾチアゾリルスルヘンアミド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー CM〕 0.5 重量部、ジブチルジチオカルバミン酸亜鉛〔三新化学工業（株）製 サンセラー BZ〕 1.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルファイド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー TT〕 0.5 重量部、ジペンタメチレンチウラムテトラスルファイド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー TRA〕 0.5 重量部、4,4'-ジチオモルフォリン〔三新化学工業（株）製、商品名 サンフェル R〕 1.5 重量部を用いた以外は、比較例 G 4 と同様に行なった。なお、物性試験用加硫ゴムは  $170^{\circ}C \cdot 10$  分加硫とした。

結果を表 9 に示す。

#### 比較例 G 6

比較例 G 4 において、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される  $SiH$  基含有化合物 3 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.3 重量部の代わりに、40%ジクミルパーキサイド〔三井化学（株）製、商品名 三井 DCP-40〕 7 重量部、トリメチロールプロパン-トリメチルアクリレート〔精工化学（株）製、商品名 ハイクロス M〕 1.5 重量部および 2-メルカプトベンゾイミダゾール〔三新化学工業（株）製、商品名 サンドアント MB〕 2.

0 重量部を用いた以外は、比較例 G 4 と同様に行なった。なお、物性試験用架橋ゴムは 1 8 0 ℃ ・ 1 0 分架橋とした。

結果を表 9 に示す。

表 9

組成物	実施例 G1	比較例 G1	比較例 G2	比較例 G3	実施例 G2	実施例 G3	比較例 G4	比較例 G5	比較例 G6
[重量部]									
共重合体ゴム(A-8)	100								
三井EPT#3045		100		100					
三井EPT#1045			100						
共重合体ゴム(A-9)					100	100			
三井EPT#3070							100	100	100
SIH基含有化合物 *1	3	3	3		3	3	3		
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.3	0.3	0.3		0.3	0.3	0.3		
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2		0.2	0.2	0.2		
三井DCP-40				6					7
ハイクロスM				1.5					1.5
サンセラーCM								0.5	
サンセラーBZ								1.5	
サンセラーTT								0.5	
サンセラーTRA								0.5	
サンフェルR								1.5	
イオウ								0.3	
亜鉛華1号	5	5	5	5	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1	1	1	1
旭#60G	45	45	45	45	95	95	95	95	95
PW-380					40	40	40	40	40
サンダントMB				2					2
t <sub>c</sub> (90)(at 160°C)	1.6	架橋せず	架橋せず	23	1.7	1.8	架橋せず	10	18
[分]									

\* 1 : C<sub>6</sub>H<sub>5</sub>-Si(OSi(CH<sub>3</sub>)<sub>2</sub>H)<sub>3</sub>で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン

表 9 (続き)

	実施例 G1	比較例 G1	比較例 G2	比較例 G3	実施例 G2	実施例 G3	比較例 G4	比較例 G5	比較例 G6
プレス架橋ゴムの物性									
$T_B$ [MPa]	15.8			16.8	13	12.5		16.2	13.7
$E_B$ [%]	230	架橋せず	架橋せず	210	340	360	架橋せず	450	350
$H_A$	68			69	69	68		72	70
耐熱老化性									
$A_R (T_B)$ [%]	110			90	115	120		65	95
$A_R (E_B)$ [%]	75	架橋せず	架橋せず	80	73	67	架橋せず	45	85
$A_H$ [ポイント]	+5			+4	+5	+7		+8	+4
圧縮永久歪み [%]	25	架橋せず	架橋せず	20	40	43	架橋せず	76	37
電気特性									
体積固有抵抗 [ $\Omega/\text{cm}$ ]	—	—	—	—	$5 \times 10^6$	$2 \times 10^6$	架橋せず	$5 \times 10^3$	$8 \times 10^8$
熱風架橋(HAV)ゴムの特性									
耐傷付き性	A	D	D	D	A	A	D	A	D

### 実施例 H 1

まず、表 1 に示すエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A-1）100重量部、シリカ〔デグサジャパン（株）製、商品名 ウルトラジル 360〕70重量部、軟化剤〔出光興産（株）製、商品名 ダイアナプロセスオイル™PW-90〕80重量部、亜鉛華5重量部、ステアリン酸1重量部、およびポリエチレングリコール1重量部を容量2.95リットルのバンバリーミキサー〔（株）神戸製鋼所製〕で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）を30秒素練りし、次いで、亜鉛華、ステアリン酸、ポリエチレングリコール、シリカ、軟化剤を入れ、2分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1分間混練を行ない、約130℃で排出し、ゴム配合物（I-1）を得た。この混練は充填率75%で行なった。

次に、この配合物（I-1）257重量部を、8インチロール（前ロールの表面温度30℃、後ロールの表面温度30℃、前ロールの回転数18rpm、後ロールの回転数15rpm）に巻き付けて、発泡剤としてプラスチック微小中空体〔松本油脂製薬（株）製、商品名 マイクロパールF-30VSD〕7重量部、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示されるSiH基含有化合物（架橋剤）4重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール0.4重量部を加え10分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度2重量%のイソプロピルアルコール溶液0.4重量部を加えて5分間混練した後、混練物をリボン状に分出した。

次に、この未架橋ゴム配合物を、チューブ状ダイス（内径 10 mm、肉厚 1 mm）を装着した 50 mm  $\phi$  押出機〔（株）三葉製作所製：L/D = 16〕を用いて、ダイス温度 60℃、シリンダー温度 40℃の条件で押し出してチューブ状に成形した。この成形体を 160℃雰囲気下の HAV（熱風加硫槽）に 15 分間架橋し、スポンジゴムを得た。

また上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、JSR キュラストメーター 3 型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、160℃の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値 ML と最高値 MH の差を ME（= MH - ML）とし、90% ME に達する時間を「 $t_c(90)$ 」とした。

得られた架橋スポンジゴムについて比重測定、吸水率測定、耐傷付き性試験および圧縮永久歪み試験を下記の方法に従って行なった。

#### （1）比重測定

熱空気架橋したチューブ状のスポンジゴムから 20 mm  $\times$  20 mm の試験片を打ち抜き、表面の汚れをアルコールで拭き取った。この試験片を 25℃雰囲気下で自動比重計〔（株）東洋精機製作所製：M-1 型〕を用いて、空気中と純水中の質量差から比重測定を行ない、スポンジゴムの比重を算出した。

#### （2）吸水率

熱空気架橋したチューブ状のスポンジゴムから 20 mm  $\times$  20 mm の試験片を打ち抜き、水面下 50 mm の位置で 125 mmHg まで減圧し、3 分間保持した。続いて、その試験片を大気中に戻して 3 分経過後、吸水した試験片の重量を測定し、以下の計算式から吸



水率を算出した。

$$\text{吸水率 (\%)} = [(W_2 - W_1) / W_1] \times 100$$

$W_1$  : 浸漬前の試験片重量 (g)

$W_2$  : 浸漬後の試験片重量 (g)

### (3) 耐傷付き性試験

実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ。

### (4) 圧縮永久歪み試験

実施例 A 1 で行なった圧縮永久歪み試験と同じ。

これらの結果を表 10 に示す。

## 実施例 H 2

実施例 H 1 において、ウルトラジル 360 (商品名) 70 重量部およびマイクロパール F-30 VSD (商品名) 7 重量部の代わりに、カーボンブラック [旭カーボン (株) 製、商品名 旭 #50 HG] 80 重量部、OB SH 系発泡剤 [永和化成工業 (株) 製、商品名 ネオセルボン N1000 SW] 2.5 重量部、尿素系発泡助剤 [永和化成工業 (株) 製、商品名 セルペースト 101 P] 1.0 重量部を用い、ダイアナプロセス PW-90 (商品名) の配合量を 70 重量部に変更した以外は、実施例 H 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 136℃であった。

結果を表 10 に示す。

## 比較例 H 1

実施例 H 1 において、実施例 H 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代

わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 H 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 131℃であった。

結果を表 10 に示す。

#### 比較例 H 2

実施例 H 1 において、実施例 H 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 H 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 134℃であった。

結果を表 10 に示す。

#### 比較例 H 3

比較例 H 1 において、マイクロパール F-30 VSD (商品名 ; プラスチック微小中空体) 7 重量部、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 4 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.4 重量部、および塩化白金酸濃度 2 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.4 重量部の代わりに、オキシビスベンゼンスルホンヒドラジッド [永和化成工業 (株) 製、商品名 ネオセルボン N1000 SW] 2.5 重量部、尿素系発泡助剤 [永和化成工業 (株) 製、商品名 セルペースト 101 P] 1.0 重量部、硫黄 1.5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール [三新化学工業 (株) 製、商品名 サンセラー M] 1.0 重量部、ジベンゾチアジル

ジスルフィド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラーDM〕

1.0重量部、ジブチルジチオカルバミン酸亜鉛〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラーBZ〕1.0重量部、ジエチルジチオカルバミン酸テルル〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラーTE〕0.3重量部の用いた以外は、比較例H1と同様に行なった。

結果を表10に示す。

#### 比較例H4

比較例H3において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-2）の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）を用いた以外は、比較例H3と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は129℃であった。

結果を表10に示す。

表 10

組成物	実 施 例		比 較 例			
	H1	H2	H1	H2	H3	H4
[重量部]						
共重合体ゴム(A-1)	100	100				100
共重合体ゴム(A-2)			100		100	
共重合体ゴム(A-3)				100		
SIH基含有化合物	4.0	4.0	4.0	4.0		
塩化白金酸2重量%のIPA溶液	0.4	0.4	0.4	0.4		
エチニルシクロヘキサノール	0.4	0.4	0.4	0.4		
イオウ					1.5	1.5
サンセラーM					1.0	1.0
サンセラーDM					1.0	1.0
サンセラーBZ					1.0	1.0
サンセラーTE					0.3	0.3
亜鉛華	5	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1
ポリエチレングリコール	1	1				
シリカ(ウルトラジル360)	70		70	70	70	70
カーボンブラック(旭#50HG)		80				
軟化剤(PW-90)	80	70	80	80	80	80
発泡剤(マイクロバール F-30VSD)	7		7	7		
発泡剤(ネオセルボン N1000SW)		2.5			2.5	2.5
発泡助剤(セルベースト101P)		1.0			1.0	1.0
架橋ゴム物性						
t <sub>c</sub> (90) (at 160°C) [分]	1.3	1.7			17.2	26.5
比重	0.52	0.55			0.61	0.71
吸水率 [%]	17	9			8	28
CS(150°C×22H) [%]	43	51	架橋せず	架橋せず	84	92
耐傷付き性	A	A	D	D	B	C

### 実施例 J 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、シリカ [デグサジャパン (株) 製、商品名 ウルトラジル 360] 50 重量部、タルク [日本ミストロン (株) 製、商品名] ミストロンベーパータルク] 50 重量部、軟化剤 [出光興産 (株) 製、商品名 ダイアナプロセスオイル™PW-380] 70 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部およびステアリン酸 1 重量部を容量 1.7 リットルのバンパリーミキサー [(株) 神戸製鋼所製] で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2- ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、シリカ、タルク、軟化剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間混練を行ない、約 120℃で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70%で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 276 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、発泡剤としてプラスチック微小中空発泡体 [松本油脂製薬 (株) 製、商品名 マイクロパール F-30 VSD] 30 重量部、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 4 重量部、反応抑制剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.4 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 2 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.4 重量部を加えて 5 分間

混練した後、混練物をシート状に分出した。

次に、この未架橋・未発泡ゴム配合物を、円状ダイス（径 10 mm）を装着した 50 mm 押出機〔（株）三葉製作所製：L/D = 16〕を用いてダイス温度 60℃、シリンダー温度 40℃の条件で押出して成形した。この成形体を 160℃雰囲気の HAV（熱風加硫槽）に 15 分間架橋・発泡させスポンジゴムを得た。

また、上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_{.90}$ 」を、JSR キュラストメーター 3 型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、160℃の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値 ML と最高値 MH の差を ME（ $=MH - ML$ ）とし、90% ME に達する時間を  $t_{.90}$  とした。

得られた架橋スポンジについて耐傷付き性試験、比重測定、吸水率測定、アスカー C 硬度試験、耐板金汚染試験および圧縮永久歪み試験を下記の方法に従って行なった。

#### （１）耐傷付き性試験

実施例 A 1 で行なった耐傷付き性試験と同じ。

#### （２）比重測定

熱空気架橋したチューブ状のスポンジゴムから 20 mm × 20 mm の試験片を打ち抜き、表面の汚れをアルコールで拭き取った。この試験片を 25℃雰囲気下で自動比重計〔（株）東洋精機製作所製：M-1 型〕を用いて、空気中と純水中の質量差から比重測定を行ない、スポンジゴムの比重を算出した。

#### （３）吸水率

熱空気架橋したチューブ状のスポンジゴムから 20 mm × 20 mm

mの試験片を打ち抜き、水面下50mmの位置で125mmHgまで減圧し、3分間保持した。続いて、その試験片を大気中に戻して3分経過後、吸水した試験片の重量を測定し、以下の計算式から吸水率を算出した。

$$\text{吸水率 (\%)} = [(W_2 - W_1) / W_1] \times 100$$

$W_1$ : 浸漬前の試験片重量 (g)

$W_2$ : 浸漬後の試験片重量 (g)

#### (4) アスカーC硬度試験

アスカーC硬度は、JIS S 6050に従って測定した。

#### (5) 耐板金汚染試験

JIS K 6267に従い、比較試料と被汚染材との色差 ( $\Delta E^*_{ab}$ )を測定した。

#### <試験条件>

温度: 70℃

時間: 24時間

板金: 0.9mm金属板に白色のアクリルエナメルを焼き付け塗装したものを使用。

#### (6) 圧縮永久歪み試験

JIS K 6262 (1993)に従い、圧縮永久歪み試験を行った。この試験条件は150℃×22hrsである。

これらの結果を表11に示す。

#### 実施例 J 2

実施例 J 1において、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、エチレン・

プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-8）を用いた以外は、実施例 J 1 と同様に行なった。

結果を表 1 1 に示す。

### 実施例 J 3

実施例 J 1 において、実施例 J 1 で用いたウルトラジル 3 6 0 （商品名） 5 0 重量部およびマイクロパール F - 3 0 V S D （商品名） 3 0 重量部の代わりに、カーボンブラック [旭カーボン（株）製、商品名 旭 # 6 0 G] 5 0 重量部、O B S H 系発泡剤 [永和化成工業（株）製、商品名 ネオセルボン 1 0 0 0 S W] 4 0 重量部、尿素系発泡助剤 [永和化成工業（株）製、商品名 セルペースト 1 0 1 P] 5 重量部を用いた以外は、実施例 J 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 1 2 2 °C であった。

結果を表 1 1 に示す。

### 比較例 J 1

実施例 J 1 において、実施例 J 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合ゴム（A-2）を用いた以外は、実施例 J 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 1 2 4 °C であった。

結果を表 1 1 に示す。

### 比較例 J 2

実施例 J 1 において、実施例 J 1 で用いたエチレン・プロピレン



・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム（A-3）を用いた以外は、実施例J1と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は122℃であった。

結果を表11に示す。

### 比較例 J 3

比較例J1において、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示されるSiH基含有化合物4重量部、エチニルシクロヘキサノール0.4重量部および塩化白金酸濃度2重量%のイソプロピルアルコール溶液0.4重量部の代わりに、イオウ1.5重量部、2-メルカトベンゾチアゾール〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラーM〕1重量部、ジブチルジチオカルバミン酸亜鉛〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラーBZ〕1.0重量部、ジメチルジチオカルバミン酸〔三新化学（株）製、商品名 サンセラーPZ〕1重量部を用いた以外は、比較例J1と同様に行なった。

結果を表11に示す。

### 比較例 J 4

比較例J3において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-2）の代わりに、エチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）を用いた以外は、比較例J3と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は132℃であった。

結果を表 1 1 に示す。

比較例 J 5

実施例 J 1 において、 $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$ で示される Si H 基含有化合物 4 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.4 重量部および塩化白金酸濃度 2 重量 % のイソプロピルアルコール溶液 0.4 重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド〔三井化学（株）製、商品名 三井 D C P〕1.3 重量部を加えた以外は、実施例 J 1 と同様に行なった。

結果を表 1 1 に示す。

表 11

組成物	実 施 例			比 較 例				
	J 1	J 2	J 3	J 1	J 2	J 3	J 4	J 5
[重量部]								
共重合体ゴム(A-1)	100		100				100	100
共重合体ゴム(A-8)		100						
共重合体ゴム(A-2)				100		100		
共重合体ゴム(A-3)					100			
SIH基含有化合物	4	4	4	4	4			
塩化白金酸2重量%のIPA溶液	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4			
エチニルシクロヘキサノール	0.4	0.4	0.4	0.4	0.4			
ジクミルパーオキシサイド								1.3
イオウ						1.5	1.5	
サンセラールM						1	1	
サンセラールBZ						1	1	
サンセラールPZ						1	1	
亜鉛華1号	5	5	5	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1	1	1
ミスロンペーパータルク	50	50	50	50	50	50	50	50
カーボンブラック(担#60G)			50					
シリカ(ウルトラジル360)	50	50		50	50	50	50	50
軟化剤(PW-380)	70	70	70	70	70	70	70	70
発泡剤(マイクロパール F-30VSD)	30	30		30	30	30	30	30
発泡剤(ネオセルボン 1000SW)			40					
発泡助剤(セルベースト101P)			5					
架橋ゴム物性								
t <sub>c</sub> (90) (at 160°C) [分]	1.5	1.8	1.7	架橋しない		3.5	5.6	15
CS (150°C×22H) [%]	46	58	50	架橋しない		79	88	32
比重	0.1	0.15	0.2			0.1	0.1	0.2
吸水率 [%]	25	35	28			32	45	32
アスカ-C硬度	4	5	12			4	5	15
耐板金汚染性 (ΔE* <sub>ab</sub> )	0.2	0.5	0.2			1.5	1.8	1.2
耐傷付き性	A	A	A	D	D	A	A	D

## 実施例 K 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、タルク [日本ミストロン (株) 製、商品名 ミストロンペーパータルク] 100 重量部および軟化剤 [出光興産 (株) 製、商品名 ダイアナプロセスオイル<sup>TM</sup> PW-380] 35 重量部、亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部を容量 1.7 リットルのバンバリーミキサー [(株) 神戸製鋼所製] で混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、タルク、軟化剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間を混練を行ない、約 130℃ で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70% で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 241 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 50℃、後ロールの表面温度 50℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 3 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.3 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物をシート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴムシートを調製した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、J S Rキュラストメーター3型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、 $160^{\circ}\text{C}$ の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値 $M_L$ と最高値 $M_H$ の差を $M_E$ （ $=M_H - M_L$ ）とし、 $90\% M_E$ に達する時間を「 $t_c(90)$ 」とした。

次に、この未架橋ゴムシートを $200^{\circ}\text{C}$ 雰囲気のH A V（ホットエアー加硫槽）に5分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例A1で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で行なった。

また、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを150トンプレス成型機を用いて $140^{\circ}\text{C}$ で10分間加圧し、厚さ2mmの架橋シートを得た。得られた架橋シートについて引張試験および耐熱老化性試験を下記の方法に従って行なった。

#### （1）引張試験

J I S K 6 2 5 1に従って、測定温度 $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度 $500\text{ mm/分}$ の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度 $T_B$ と伸び $E_B$ を測定した。

#### （2）耐熱老化性試験

J I S K 6 2 5 7に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを $150^{\circ}\text{C}$ のオープン中に72時間入れて老化させた後、測定温度 $23^{\circ}\text{C}$ 、引張速度 $500\text{ mm/分}$ の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ保持率 $A_R(T_B)$ と、伸び保持率 $A_R(E_B)$ を算出した。

さらに、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを150ト

ンプレス成型機を用いて140℃で10分間加圧し、厚さ1mmの架橋シートを得た。得られた架橋シートについて体積抵抗率試験を下記の方法に従って行なった。

〔体積抵抗率試験〕

日本ゴム協会標準規格SRIS 2304（1971）に準拠して体積抵抗率試験を行ない、架橋シートの体積固有抵抗値を測定した。

さらにまた、上記のようにして得られた未架橋ゴムシートを150トンプレス成型機を用いて、140℃で15分間加圧し、JISK 6250に基づいて作製した架橋シートについて圧縮永久歪み試験を下記の方法に従って行なった。

〔圧縮永久歪み試験〕

JIS K 6262（1993）に従い、圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は150℃×22hrsである。

これらの結果を表12に示す。

実施例K 2

実施例K 1において、実施例K 1で用いたミストロンベーパータルク（商品名）100重量部の代わりに、カーボンブラック〔旭カーボン（株）製、商品名 旭#60G〕50重量部、シリカ〔日本シリカ（株）、商品名 ニップシールVN3〕50重量部を用いた以外は、実施例K 1と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は135℃であった。

結果を表12に示す。

実施例K 3

実施例 K 1 において、実施例 K 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合ゴム (A-8) を用いた以外は、実施例 K 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 142℃であった。

結果を表 12 に示す。

#### 比較例 K 1

実施例 K 1 において、実施例 K 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 K 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 134℃であった。

結果を表 12 に示す。

#### 比較例 K 2

実施例 K 1 において、実施例 K 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 K 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 132℃であった。

結果を表 12 に示す。

#### 比較例 K 3

比較例 K 1 において、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示される Si H 基含有化合物 3 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部、塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.2 重量部の代わりに、イオウ 1.5 重量部、2-メルカトベンゾチアゾール〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー M〕 0.5 重量部、テトラメチルチウラムジスルファイド〔三新化学工業（株）製、商品名 サンセラー TT〕 1.0 重量部を用いた以外は、比較例 K 1 と同様に行なった。

結果を表 1 2 に示す。

#### 比較例 K 4

比較例 K 3 において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-2）の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）を用いた以外は、比較例 K 3 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 132℃であった。

結果を表 1 2 に示す。



表 12

組成物	実 施 例			比 較 例			
	K1	K2	K3	K1	K2	K3	K4
[重量部]							
共重合体ゴム(A-1)	100	100					100
共重合体ゴム(A-8)			100				
共重合体ゴム(A-2)				100		100	
共重合体ゴム(A-3)					100		
SIH基含有化合物	3	3	3	3	3		
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.3	0.3	0.3	0.3	0.3		
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2	0.2	0.2		
イオウ						1.5	1.5
サンセラーM						0.5	0.5
サンセラーTT						1	1
亜鉛華	5	5	5	5	5	5	5
ステアリン酸	1	1	1	1	1	1	1
ミストロンベーパータルク	100		100	100	100	100	100
カーボンブラック(旭#60G)		50					
シリカ(ニップシールVN3)		50					
軟化剤(PW-380)	35	35	35	35	35	35	35
架橋ゴム物性							
$t_c$ (90) (at 160°C) [分]	1.5	0.5	1.4	架橋 しない	架橋 しない	16.3	23.5
CS(150°C×22h) [%]	39	25	50			75	88
体積固有抵抗 [Ω・cm]	$2 \times 10^{16}$	$3 \times 10^7$	$2 \times 10^{16}$			$9 \times 10^{14}$	$1 \times 10^{15}$
耐熱老化性(150°C×72h)							
$A_R$ ( $T_B$ ) [%]	65	95	62			32	28
$A_R$ ( $E_B$ ) [%]	51	71	50			25	23
$T_B$ [MPa]	5.3	10.2	10.4			14.5	8.5
$E_B$ [%]	200	160	340			390	480
耐傷付き性	A	A	A	D	D	A	A

### 実施例 L 1

まず、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、酸化亜鉛 2 種 [堺化学工業 (株) 製の亜鉛華 1 号] 5 重量部、ステアリン酸 [日本油脂 (株) 製、椿 (商標)] 1 重量部およびカーボンブラック [東海カーボン (株) 製、シースト 116 G (商標); 算術平均粒径 38 ミリミクロン] 45 重量部を容量 1.7 リットルのバンバリーミキサーを用いて混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、カーボンブラックを入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに、1 分間混練を行ない、約 150℃ で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70% で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 151 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 2 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.5 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物 (1) をシート状に分出し、50 トンプレス成形機を用いて 40℃ で 6 分間加圧し、厚み 2 mm の未架橋ゴムシート (I) を調製した。

また上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、J S R キュラストメーター 3 型〔日本合成ゴム（株）製〕を用いて、160℃の条件で測定した。架橋（加硫）曲線から得られるトルクの最低値  $M_L$  と最高値  $M_H$  の差を  $M_E (= M_H - M_L)$  とし、90%  $M_E$  に達する時間を  $t_c(90)$  とした。

次いで、上記混練物（1）を、150トンプレス成形機〔コータキ精機（株）製〕を用い、型温度140℃で10分間加熱加圧し、2mm厚の架橋シートを調製し、引張り特性、硬さ試験、耐熱老化特性、耐液性の測定に供した。また圧縮永久歪みは、型温度140℃で15分間加熱し、直径29.0mm、厚さ12.7mmの直円柱形のブロックを調製し、このブロックを用いて測定した。これらの試験は、下記の方法に従って行なった。

#### （1）引張試験

J I S K 6 2 5 1 に従って、測定温度23℃、引張速度500mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度  $T_B$  と伸び  $E_B$  を測定した。

#### （2）硬さ試験

J I S K 6 2 5 3 に従って、測定温度23℃でデュロメーター硬さ試験（タイプA）を行ない、硬さを算出した。

#### （3）耐熱老化性試験

J I S K 6 2 5 7 に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを150℃のオーブン中に72時間入れて老化させた後、測定温度23℃、引張速度500mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ

保持率  $A_R (T_B)$  と、伸び保持率  $A_R (E_B)$  を算出した。また、架橋シートを  $150^\circ\text{C}$  のオープン中に 72 時間入れて老化させた後、JIS K 6253 に従って、測定温度  $23^\circ\text{C}$  でデュロメーター硬さ試験（タイプ A）を行ない、老化後の硬さを算出し、老化前と老化後の硬さ変化  $A_H$  を算出した。

#### （４）耐液性試験

JIS K 6253 に従い、架橋ゴムシートを  $150^\circ\text{C}$  の DOT-3 ブレーキ液中に 70 時間浸漬させた後、架橋ゴムシートの膨潤度を算出した。

#### （５）圧縮永久歪み試験

JIS K 6262 (1993) に従い、圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は  $150^\circ\text{C} \times 22 \text{ hrs}$  である。

次に、上記未架橋ゴムシート（I）を  $200^\circ\text{C}$  雰囲気の HAV（ホットエアー加硫槽）に 5 分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例 A1 で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で行なった。

これらの結果を表 13 に示す。

#### 比較例 L1

実施例 L1 において、実施例 L1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム（A-1）の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合ゴム（A-2）を用い、熱プレス時の型温度を  $170^\circ\text{C}$  に変更した以外は、実施例 L1 と同様に行なった。なお、バン

バリミキサーから排出した際の混練物の温度は134℃であった。

結果を表13に示す。

#### 比較例 L 2

実施例 L 1 において、実施例 L 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用い、熱プレス時の型温度を170℃に変更した以外は、実施例 L 1 と同様に行なった。なお、バンバリミキサーから排出した際の混練物の温度は132℃であった。

結果を表13に示す。

#### 比較例 L 3

比較例 L 1 において、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される Si H 基含有化合物 2 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.5 重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド (DCP) 100%濃度品を1.7重量部用い、熱プレス時の型温度を170℃に変更した以外は、比較例 L 1 と同様に行なった。

結果を表13に示す。

#### 比較例 L 4

比較例 L 1 において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-2) の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合体ゴム (A-3) を用い、かつ  $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される Si H 基含有化合物 2 重量部、エチニルシクロヘキサノール

ール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.5 重量部の代わりに、加硫促進剤として C B S [商品名：サンセラー C M、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部、Z n B D C [商品名：サンセラー B Z、三新化学工業（株）製] 0.7 重量部、T M T D [商品名：サンセラー T T、三新化学工業（株）製] 0.7 重量部、D P T T [商品名：サンセラー T R A、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部、T e E D C [商品名：サンセラー E Z、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部およびイオウ 1.0 重量部を用いた以外は、比較例 L 1 と同様に行なった。

結果を表 1 3 に示す。

表 1 3

組成物	実施例	比較例				
		L 1	L 1	L 2	L 3	L 4
[重量部]						
重合体ゴム(A-1)	100				100	
重合体ゴム(A-2)			100			
重合体ゴム(A-3)				100		100
SIH基含有化合物 *1	2		2	2		
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.5		0.5	0.5		
エチニルシクロヘキサノール	0.2		0.2	0.2		
DCP (100%)					2.7	
CBS						0.5
ZnBDC						0.7
TMTD						0.7
DPTT						0.5
TeEDC						0.5
イオウ						1.0
t c (90) (at 160℃)	1				30	20
架橋条件 (プレス架橋)	140℃ 10分	170℃ 10分	170℃ 10分	170℃ 10分	170℃ 10分	140℃ 10分
プレス架橋ゴムの特性						
常態物性						
T B	[M P a]	16.3	架橋	架橋	17.6	18.5
E B	[%]	250	しない	しない	260	250
耐熱老化性						
A R (T B)	[%]	97			95	89
A R (E B)	[%]	95			87	53
A H	[ポイント]	+1			+1	+3
圧縮永久歪み	[%]	10			13	39
耐液性						
Δ V	[%]	+3			+5	+9
熱風架橋(HAV)ゴムの特性						
耐傷付き性		A	D	D	D	A

\* 1 :  $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン  
 \* 2 : 実施例 L 1、比較例 L 1 ~ L 3 の組成物は、それぞれ亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部およびカーボンブラック 4 5 重量部を含んでいる。

実施例 M 1

表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) 100 重量部、酸化亜鉛 2 種 [堺化学工業 (株) 製、亜鉛華 1 号] 5 重量部、ステアリン酸 [日本油脂 (株) 製、椿 (商標)] 1 重量部、カーボンブラック [東海カーボン (株) 製、シースト 116 G (商標) ; 算術平均粒径 38 ミリミクロン] 40 重量部、タルク [日本ミストロン社製、ミストロンベーパータルク (商標)] 70 重量部および活性剤としてポリエチレングリコール (分子量 = 4000) 1 重量部を、容量 1.7 リットルバンバリーミキサーを用いて混練した。

混練方法は、まずエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) を 30 秒素練りし、次いで、亜鉛華 1 号、ステアリン酸、カーボンブラック、タルクおよび活性剤を入れ、2 分間混練した。その後、ラムを上昇させ掃除を行ない、さらに 1 分間混練を行ない、約 150℃ で排出し、ゴム配合物 (I-1) を得た。この混練は充填率 70% で行なった。

次に、この配合物 (I-1) 217 重量部を、8 インチロール (前ロールの表面温度 30℃、後ロールの表面温度 30℃、前ロールの回転数 16 rpm、後ロールの回転数 18 rpm) に巻き付けて、 $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 (架橋剤) 2 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部を加え 10 分間混練したのちに、触媒として塩化白金酸濃度 5 重量% のイソプロピルアルコール溶液 0.5 重量部を加えて 5 分間混練した後、混練物 (1) をシート状に分出し、50 ト



ンプレス成形機を用いて40℃で6分間加圧し、厚み2mmの未架橋ゴムシートを調製した。

また、上記熱硬化前の架橋剤入り混練物について架橋速度の目安として「 $t_c(90)$ 」を、JSRキュラストメーター3型〔日本合成ゴム(株)製〕を用いて、160℃の条件で測定した。架橋(加硫)曲線から得られるトルクの最低値MLと最高値MHの差をME( $=MH-ML$ )とし、90%MEに達する時間を「 $t_c(90)$ 」とした。

次いで、上記混練物(1)を、150トンプレス成形機〔コータキ精機(株)製〕を用い、型温度140℃で1.0分間加熱加圧し、2mm厚の架橋シートを調製し、引張試験、耐熱老化性試験およびエチレングリコール膨潤度( $\Delta V$ )に供した。

また、圧縮永久歪み(CS)は、型温度140℃で15分間加熱し、直径29.0mm、厚さ12.7mmの直円柱形のブロックを調製し、このブロックを用いて測定した。これらの試験は、下記の方法に従って行なった。

#### (1) 引張試験

JIS K6251に従って、測定温度23℃、引張速度500mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の強度 $T_B$ と伸び $E_B$ を測定した。

#### (2) 耐熱老化性試験

JIS K6257に従って、耐熱老化性試験を行なった。すなわち、架橋シートを120℃のオーブン中に70時間入れて老化させた後、測定温度23℃、引張速度500mm/分の条件で引張試験を行ない、架橋シートの破断時の伸びと強度を測定し、引張強さ

保持率  $A_R (T_B)$  と、伸び保持率  $A_R (E_B)$  を算出した。また、架橋シートを  $120^\circ\text{C}$  のオープン中に  $70$  時間入れて老化させた後および老化前に、JIS K 6253 に従って、測定温度  $23^\circ\text{C}$  でデュロメーター硬さ試験（タイプ A）を行ない、老化前の硬さと老化後の硬さを算出し、老化前と老化後の硬さ変化  $A_H$  を算出した。

#### （３）エチレングリコール膨潤度試験

JIS K 6258 に従い、架橋ゴムシートを  $100^\circ\text{C}$  のエチレングリコール溶液中に  $24$  時間浸漬させた後、膨潤度 ( $\Delta V$ ) を測定した。

#### （４）圧縮永久歪み試験

JIS K 6262 (1993) に従い、圧縮永久歪み試験を行なった。この試験条件は  $150^\circ\text{C} \times 22 \text{ hrs}$  である。

次に、上記未架橋ゴムシート (I) を  $200^\circ\text{C}$  雰囲気 of HAV (ホットエアー加硫槽) に  $5$  分間放置し、無圧で架橋シートを作製した。

また、金型汚染試験を以下の条件で行なった。すなわち、縦型射出成形機 [松田製作所社製、VI-75P] を用いて、ストローク  $7.7 \text{ mm}$ 、最大型締力  $75$  トン、架橋温度  $160^\circ\text{C}$ 、架橋時間  $100$  秒で金型表面に汚染が発生するまでのショット数を求めた。このショット数を耐金型汚染性の指標とした。

得られた架橋シートについて耐傷付き性試験を実施例 A1 で行なった耐傷付き性試験と同じ方法で行なった。

これらの結果を表 14 に示す。

#### 比較例 M1

実施例 M 1 において、実施例 M 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネン共重合ゴム (A-2) を用いた以外は、実施例 M 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 134℃であった。

結果を表 14 に示す。

#### 比較例 M 2

実施例 M 1 において、実施例 M 1 で用いたエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム (A-1) の代わりに、表 1 に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム (A-3) を用いた以外は、実施例 M 1 と同様に行なった。なお、バンバリーミキサーから排出した際の混練物の温度は 132℃であった。

結果を表 14 に示す。

#### 比較例 M 3

比較例 M 1 において、 $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示される SiH 基含有化合物 2 重量部、エチニルシクロヘキサノール 0.2 重量部および塩化白金酸濃度 5 重量%のイソプロピルアルコール溶液 0.5 重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド (DCP) 40%希釈物 [化薬アクゾ (株) 製、カヤミクル D-40 (商標)] 3.5 重量部と架橋助剤としてハイクロス M (商標) [精工化学社 (株) 製] 1.0 重量部を用い、かつ、金型汚染試験は、架橋温度 190℃、架橋時間 120 秒の条件で行ない、また架橋ゴム

の物性は、150トンプレス成形機を用いて170℃で15分間加圧して得られた厚さ2mmの架橋シートについて、引張試験および耐熱老化試験を行なった以外は、比較例M1と同様に行なった。

結果を表14に示す。

#### 比較例M4

比較例M1において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-2)の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム(A-3)を用い、かつ $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示されるSiH基含有化合物2重量部、エチニルシクロヘキサノール0.2重量部および塩化白金酸濃度5重量%のイソプロピルアルコール溶液0.5重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド(DPC)40%希釈物〔化薬アクゾ(株)製、カヤミクルD-40(商標)〕6.8重量部と架橋助剤としてハイクロスM(商標)〔精工化学社(株)製〕1.0重量部を用いた以外は、比較例M1と同様に行なった。

結果を表14に示す。

#### 比較例M5

比較例M1において、エチレン・プロピレン・5-エチリデン-2-ノルボルネンランダム共重合体ゴム(A-2)の代わりに、表1に示すエチレン・プロピレン・ジシクロペンタジエンランダム共重合ゴム(A-3)を用い、かつ $C_6H_5-Si(O-Si(CH_3)_2H)_3$ で示されるSiH基含有化合物2重量部、エチニルシクロヘキサノール0.2重量部および塩化白金酸濃度5重量%のイソプロピルアルコール溶液0.5重量部の代わりに、ジクミルパーオキサイド(DPC)40%希釈物〔化薬アクゾ(株)製、カヤミクルD-40(商標)〕6.8重量部と架橋助剤としてハイクロスM(商標)〔精工化学社(株)製〕1.0重量部を用いた以外は、比較例M1と同様に行なった。

ルコール溶液 0.5 重量部の代わりに、加硫促進剤として C B S [商品名：サンセラー C M、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部、Z n B D C [商品名：サンセラー B Z、三新化学工業（株）製] 0.7 重量部、T M T D [商品名：サンセラー T T、三新化学工業（株）製] 0.7 重量部、D P T T [商品名：サンセラー T R A、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部、T e E D C [商品名：サンセラー E Z、三新化学工業（株）製] 0.5 重量部およびイオウ 1.0 重量部を用いた以外は、比較例 M 1 と同様に行なった。

結果を表 1 4 に示す。

表 1 4

組成物	実施例	比較例				
	M 1	M 1	M 2	M 3	M 4	M 5
[重量部]						
共重合体ゴム(A-1)	100					
共重合体ゴム(A-2)		100		100		
共重合体ゴム(A-3)			100		100	100
SiH基含有化合物 *1	2	2	2			
塩化白金酸5重量%のIPA溶液	0.5	0.5	0.5			
エチニルシクロヘキサノール	0.2	0.2	0.2			
DCP/D-40				3.5	6.8	
ハイクロスM				1.0	1.0	
CBS						0.5
ZnBDC						0.7
TMTD						0.7
DPTT						0.5
TeEDC						0.5
イオウ						1.0
$t_c(90)$ (at 160°C) [分]	1	-	-	30	30	20
熱風架橋(HAV)ゴムの特性 耐傷付き性	A	D	D	D	D	A

- \* 1 :  $C_6H_5-Si(OSi(CH_3)_2H)_3$  で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン
- \* 2 : 実施例 M 1、比較例 M 1 ~ M 5 の組成物は、それぞれ亜鉛華 1 号 5 重量部、ステアリン酸 1 重量部、カーボンブラック 40 重量部、タルク 70 重量部および活性剤 1 重量部を含んでいる。

表 1 4 (続き)

	実施例	比較例				
		M 1	M 2	M 3	M 4	M 5
金型汚染性 ショット数 [回]	M 1 200	—	—	55	50	20
プレス架橋ゴムの特性 常態物性		架橋 しない				
$T_B$ [MPa]	10.5	架橋 しない	架橋 しない	11.5	10.2	10.1
$E_B$ [%]	200			220	260	250
耐熱老化性		架橋 しない				
$A_R(T_B)$ [%]	101	架橋 しない				
$A_R(E_B)$ [%]	99	架橋 しない				
$A_H$ [ポイント]	+ 1	架橋 しない				
圧縮永久歪み [%]	17	架橋 しない				
エチレングリコール膨潤度		架橋 しない				
$\Delta V$ [%]	1.5	架橋 しない				
				1.5	1.5	1.7

実施例 N 1

ポリオレフィン系合成ポリマーとしてエチレン・プロピレン・5-ビニル-2-ノルボルネン共重合体 [ML<sub>1+4</sub> (100℃)] 44、エチレン含有量 57 モル%、ヨウ素価 10] (三井化学 (株) 製) 100 重量部、比表面積が 200 m<sup>2</sup> / g のシリカアエロジル 200 [商品名; 日本アエロジル (株) 製] 30 重量部を表 15 に示す割合で 2 本ロールを用いて配合し、ゴムコンパウンドを作製した。

次に、得られた上記ゴムコンパウンドに下記式 (i)



で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部、塩化白金酸の 5% イソプロピルアルコール溶液 0.05 重量部を 2 本ロールにて添加後、この組成物を押し出し機 [混練区間の内径 (D) 40 mm φ、内径 (D) に対する混練区間の長さ (L) の比 (L/D) が 1.2] で連続的に押し出して、図 1 に示すような断面形状を有する成形体を作製した。

架橋は、200℃で、滞留時間が 5 分間の常圧熱気加硫を行なった後、更に 100℃で 2 時間 2 次架橋を行ない、図 1 に示すようなジッパータイプガasketを得た。

得られたジッパータイプガasketを構成する硬化ゴムの物性、およびジッパータイプガasketの耐風圧試験を行なった。結果を表 15 に示す。

なお、前記物性は、JIS K6249 に準拠し、A 型試験機を用いた硬さ (目盛り)、引張り強さ、伸びについて測定し、また、



耐風圧試験は、図 1 および図 2 に示すように、アルミサッシ 2 にガラス 3 (1400 mm×1840 mm×15 mm) をジッパータイプガスケット 1 を介して固定し、板ガラス面に対して垂直に風圧 (700 kgf/m<sup>2</sup>) をかけ、板ガラスが枠から脱落するか否かで評価した。

#### 比較例 N 1

実施例 N 1 で用いたポリオレフィン系合成ポリマーの代わりに、EPT-3045 [三井化学 (株) 製、ジエン成分 = エチリデンノルボルネン] を使用した以外は、実施例 N 1 と同様にゴムコンパウンドを配合し、常圧熱気加硫を行なったところ、加硫が進まず、成形品を得ることができなかった。

#### 実施例 N 2

実施例 N 1 において、実施例 N 1 で用いた諸成分の他に、ジメチルシロキサン単位 99.85 モル%、メチルビニルシロキサン単位 0.125 モル%、ジメチルビニルシロキサン単位 0.025 モル% からなり、平均重合度が約 8,000 であるオルガノポリシロキサン 10 重量部、および発泡剤としてアゾビスイソブチロニトリル (AIBN) 4 重量部を追加し、また塩化白金酸 5% イソプロピル溶液の配合量を 0.5 重量部とした以外は、実施例 N 1 と同様にし、ゴムパウンドを押し出し、同様に架橋させ、スポンジ状のジッパータイプガスケットを得た。得られたスポンジのセルは均一で緻密であった。また、上記ゴムパウンドを 160℃、15 分で金型発泡させ、スポンジ状ガスケットを得た。得られたスポンジのセルは均一で緻密であり、端部の形状も綺麗に仕上がったものであった。

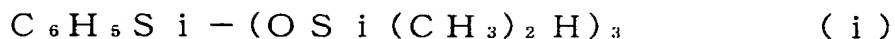
表 15

	実 施 例		比 較 例
	N 1	N 2	N 1
組 成 [重量部]			
E P T R-0 4 6	1 0 0	9 0	
E P T-3 0 4 5			1 0 0
オルガノポリシロキサン		1 0	
アエロジル 2 0 0 (シリカ)	3 0	3 0	3 0
オルガノハイドロジェンポリシロキサン (i)	1. 5	1. 5	1. 5
塩化白金酸 5 % I P A 溶液	0. 0 5	0. 5	0. 0 5
エチニルシクロヘキサノール	0. 0 6	0. 0 6	0. 0 6
発泡剤 (A I B N)		4	
圧縮成型の特性			
T10 (min)	0. 2 5		1. 2 0
硬さ (デュロメーター A)	7 3		4 0
引張り強さ (M p a)	1 2. 0		3. 5
伸び (%)	1 8 0		6 0 0
熱風加硫 (H A V) の特性			
硬さ (デュロメーター A)	7 1	アスカー C 硬度 4 0 (スポンジ)	完全硬化 せず
引張り強さ (M p a)	1 0. 5		
伸び (%)	1 8 0		
耐風圧試験	脱落なし		

実施例〇 1, 〇 2

(A) 成分としてポリオレフィン系合成ポリマー [ML<sub>1+4</sub>(100℃) 44、エチレン含有量 57 モル%、ヨウ素価 10] (商品名 EPT R-046、三井化学(株)製) と、(B) 成分として JIS-A 硬度 50 の硬化物を与えるシリコーンゴムコンパウンド KE-551-U [商品名; シリコーン分約 75 重量%、信越化学工業(株)製] を、表 16 に示す割合で 2 本ロールを用いて配合し、EPDM-シリコーン混合ゴムコンパウンドを作製した。

次に、得られた上記ゴムコンパウンド 100 重量部に、下記式 (i)



で示されるオルガノハイドロジェンポリシロキサン 1.5 重量部、反応制御剤としてエチニルシクロヘキサノール 0.06 重量部および塩化白金酸の 5% イソプロピルアルコール溶液 0.05 重量部を 2 本ロールにて添加、混合し、直径 6 mm のステンレス芯金の上に肉厚 4 mm になるように芯金同時押し出しを行ない、150℃の熱風乾燥機に入れて 20 分間熱風加硫(HAV: hot air vulcanization)させ、その後表面研磨により直径 12 mm のロールを得た。

また、熱硬化前の硬化剤入りゴムコンパウンドを予め 2 本ロールにて 2 mm のシート状に成形した後、同様に熱風乾燥機において 150℃で 20 分間熱風加硫させて、厚さ 2 mm の物性測定用シートを作製した。

それぞれの配合、成形方法で得られたシートは、力学的特性を JIS K6249 に準じて測定した。シートの硬さはデュロメータ

ー A で測定した。

また、表面の架橋状態の目安として硬化後のゴム弾性体の表面を鋭利な突起物で引っかき、ゴムに引っかき跡が残るかどうかを調べた。

さらに、OPCへの汚染は、得られたロールをレーザープリンターのOPCドラムにロール両端に1kg（スポンジロールについては200g）の荷重を24時間与えた後、再びレーザープリンターに組み戻し、汚染による白すじがファーストプリントより何枚まで残るかを評価した。結果を表16に示す。

### 実施例 O 3

実施例 O 1 と同様の割合で混合したEPDM-シリコーン混合ゴムコンパウンド100重量部と、アセチレンブラック〔商品名 デンカブラック、電気化学（株）製〕25重量部を2本ロールを用いて混練し、ゴムコンパウンドを得た。

得られた上記ゴムコンパウンドに、実施例 O 1 と同様に、実施例 O 1 で用いたオルガノハイドロジェンポリシロキサン（架橋剤）1.5重量部、エチニルシクロヘキサノール（反応制御剤）0.06重量部および塩化白金酸の5%イソプロピルアルコール溶液0.05重量部を添加、混合し、導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表16に示す。

### 実施例 O 4

実施例 O 3 において、実施例 O 3 で用いたアセチレンブラックを含むEPDM-シリコーン混合ゴムコンパウンドに、架橋補助剤と

して、ジクミルパーオキサイド 3 重量部を使用した以外は、実施例 O 3 と同様に、実施例 O 3 で用いたオルガノハイドロジェンポリシロキサン（架橋剤） 1.5 重量部、エチニルシクロヘキサノール（反応制御剤） 0.06 重量部および塩化白金酸の 5 % イソプロピルアルコール溶液 0.05 重量部を添加、混合し、導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表 16 に示す。

#### 実施例 O 5

実施例 O 1 と同様の割合で混合した EPDM-シリコーン混合ゴムコンパウンド 100 重量部に、オルガノハイドロジェンポリシロキサン（架橋剤） 1.5 重量部、エチニルシクロヘキサノール（反応制御剤） 0.4 重量部、塩化白金酸の 5 % イソプロピルアルコール溶液 0.6 重量部、アゾビスイソブチロニトリル（AIBN） 6.0 重量部を 2 本ロールにて添加、混合し、直径 6 mm のゴム接着のためプライマー処理したステンレス芯金の上に肉厚 2 mm になるように芯金同時押し出しを行い、150℃の熱風乾燥機に入れて 40 分間熱風加硫で発泡させ、スポンジを作製した。その後表面研磨により直径 12 mm のロールを得た。

得られた導電ロールの OPC 汚染について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。また、上記のロール状態のスポンジについて、アスカー C 硬度試験を行なった。結果を表 16 に示す。

#### 比較例 O 1

実施例 O 1 で用いたポリオレフィン系合成ポリマーの代わりに、

E P T X - 4 0 1 0 [商品名 ; 三井化学 (株) 製、ジエン成分としてエチリデンノルボルネンを使用] を使用した以外は、実施例 O 1 と同様に、ゴムコンパウンドを配合し、実施例 O 1 と同様にして導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表 1 6 に示す。

#### 比較例 O 2

実施例 O 3 において、実施例 O 3 で用いたポリオレフィン系ゴム (E P T R - 0 4 6) の代わりに E P T X - 4 0 1 0 (商品名) を使用した以外は、実施例 O 3 と同様の配合を行ない、実施例 O 3 と同様にして導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表 1 6 に示す。

#### 比較例 O 3

実施例 O 4 において、実施例 O 4 で用いたポリオレフィン系ゴム (E P T R - 0 4 6) の代わりに E P T X - 4 0 1 0 (商品名) を使用し、ジクミルパーオキサイドの配合量を 8 重量部に変更した以外は、実施例 O 4 と同様の配合を行ない、実施例 O 4 と同様にして導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表 1 6 に示す。

#### 比較例 O 4

実施例 O 1 において、ベースゴムコンパウンドにシリコーンゴムコンパウンド K E - 5 5 1 - U (商品名) のみを使用し、ポリオレ

フィン系ゴム（E P T R - 0 4 6）を使用しなかった以外は、実施例 O 1 と同様の配合を行ない、実施例 O 1 と同様にして導電ロールおよびシート状成形物を得た。

得られた導電ロールおよびシート状成形物について、実施例 O 1 と同様の試験を行なった。結果を表 1 6 に示す。

表 16

組 成	実 施 例					比 較 例			
	O1	O2	O3	O4	O5	O1	O2	O3	O4
[重量部]									
EPT R-046	90	60	90	90	90				
KE-551-U	10	40	10	10	10	10	10	10	100
EPTX-4010						90	90	90	
デンカブラック			25	25			25	25	
オルガノハイドロジェン ポリシロキサン	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5	1.5
塩化白金酸5%IPA溶液	0.05	0.05	0.05	0.05	0.6	0.05	0.05	0.05	0.05
エチニルシクロヘキサノール	0.06	0.06	0.06	0.06	0.04	0.06	0.06	0.06	0.06
ジクミルパーオキシサイド				3				8	
発泡剤 (AIBN)					6.0				
シートの特性									
硬さ (デュロメーターA)	67	62	65	66	アスカー C硬度 25 (スポンジ)	硬化 せず	硬化 せず	やや 硬化 *	50
引張り強さ (Mpa)	13.3	11.2	7.3	12.2					5.6
伸び (%)	180	200	230	150					290
ロールの特性									
表面硬化性	○	○	○	◎	—	—	—	×	◎
OPC汚染 (枚)	0	0	0	0	0	—	—	—	10

\* : 物性を取得できる架橋ではなかった。



表 1 6 の結果より、新規ジエンを使用した E P D M ゴム組成物は、従来のものに比べ、熱風加硫により架橋反応が速やかに進んで、良好な特性を有するロールが得られることがわかった。

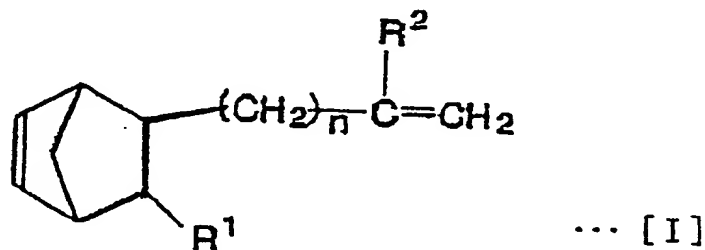
## 請求の範囲

1. シート状に成形した後熱空気架橋して得られる架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み(CS)が70%以下であることを特徴とする架橋可能なゴム組成物。

2. 非共役ポリエンである下記一般式[I]または[II]で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、

S i H基を1分子中に少なくとも2個持つS i H基含有化合物(B)と

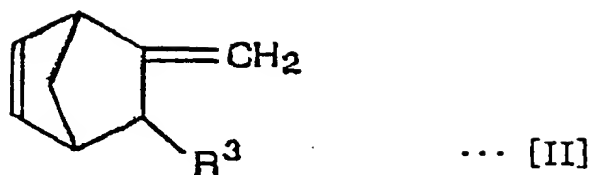
からなることを特徴とする架橋可能なゴム組成物；



[式中、nは0ないし10の整数であり、

R<sup>1</sup> は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基であり、

R<sup>2</sup> は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である]、



[式中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

3. 前記ゴム組成物が、

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、

S i H 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ S i H 基含有化合物 (B) と、

触媒 (E) と

からなることを特徴とする請求項 2 に記載の架橋可能なゴム組成物。

4. 前記ゴム組成物が、

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、

S i H 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ S i H 基含有化合物 (B) と、

触媒 (E) と、

反応抑制剤 (F) と

からなることを特徴とする請求項 2 に記載の架橋可能なゴム組成物。

5. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 40 / 60 ~ 95 / 5 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 0.5 ~ 50 の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ~ 1.0 dl / g の範囲にある

ことを特徴とする請求項 2 ~ 4 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

6. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、前記 (i)、(ii) および (iii) の物性の他に、  
(iv) GPC により測定した分子量分布 ( $M_w / M_n$ ) が 3 ~ 50 であり、

(v) 該エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) 100 g に対し、ジクミルパーオキサイド 0.01 モルを用い、170℃で10分間プレス架橋したときの有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) が  $1.5 \times 10^{20}$  個 /  $\text{cm}^3$  以上である

ことを特徴とする請求項 5 に記載の架橋可能なゴム組成物。

7. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、前記 (i)、(ii)、(iii)、(iv) および (v) の物性の他に、

(vi) 100℃でのメルトフローカーブから求めた、ずり応力  $0.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_1$  とずり応力  $2.4 \times 10^6 \text{ dyn/cm}^2$  を示すときのずり速度  $\gamma_2$  との比  $\gamma_2 / \gamma_1$  と、前記有効網目鎖密度 ( $\nu$ ) との比が、一般式 [III]

$$0.04 \times 10^{-19} \leq \text{Log} (\gamma_2 / \gamma_1) / \nu \leq 0.20 \times 10^{-19}$$

... [III]

で表わされる関係を満足する

ことを特徴とする請求項6に記載の架橋可能なゴム組成物。

8. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)が、下記化合物(J)および(K)を主成分として含有する触媒を用い、重合温度30～60℃、重合圧力4～12 kgf/cm<sup>2</sup>、非共役ポリエンとエチレンとの供給量のモル比(非共役ポリエン/エチレン)0.01～0.2の条件で、エチレン、 $\alpha$ -オレフィンおよび前記一般式[I]または[II]で表わされるノルボルネン化合物を共重合して得られるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴムであることを特徴とする請求項2～7のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物；

(J)  $\text{VO}(\text{OR})_n\text{X}_{3-n}$  (式中、Rは炭化水素基であり、Xはハロゲン原子であり、nは0または1～3の整数である) で表わされる可溶性バナジウム化合物、または  $\text{VX}_4\text{X}$  はハロゲン原子である) で表わされるバナジウム化合物、

(K)  $\text{R}'_m\text{AlX}'_{3-m}$  (R'は炭化水素基であり、X'はハロゲン原子であり、mは1～3の整数である) で表わされる有機アル

ミニウム化合物。

9. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）のソックスレー抽出（溶媒：沸騰キシレン、抽出時間：3時間、メッシュ：325）後の不溶解分が1%以下であることを特徴とする請求項8に記載の架橋可能なゴム組成物。

10. 前記触媒（E）が白金系触媒であることを特徴とする請求項3または4に記載の架橋可能なゴム組成物。

11. 前記ゴム組成物が、請求項1に記載の物性を有することを特徴とする請求項2～10のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

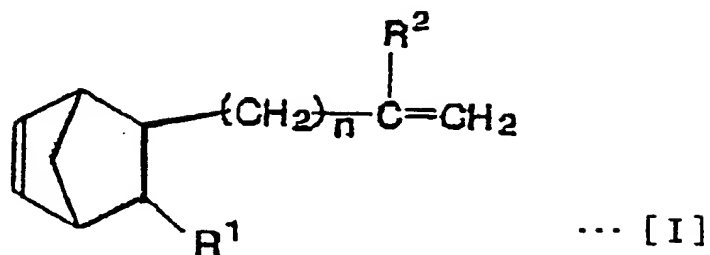
12. 前記ゴム組成物の160℃での架橋速度（ $t_c(90)$ ）が15分以下であることを特徴とする請求項1～11のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

13. 非共役ポリエンである下記一般式〔I〕または〔II〕で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物（1）から導かれる構成単位と、下記一般式〔III〕で表わされる基を含有する非共役ポリエン化合物（2）から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A1）と、

S i H基を1分子中に少なくとも2個持つS i H基含有化合物

(B) と

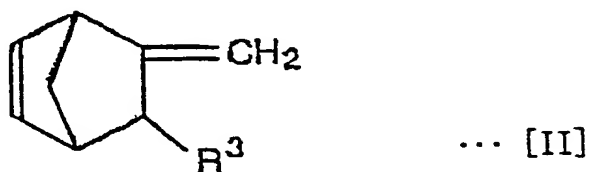
からなることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物；



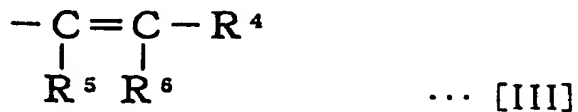
[式中、n は 0 ないし 10 の整数であり、

R¹ は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基であり、

R² は水素原子または炭素原子数 1 ～ 5 のアルキル基である]、



[式中、R³ は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]、



[式中、R⁴ は炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基であり、

R<sup>5</sup> および R<sup>6</sup> は、それぞれ独立に、水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である」。

14. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A1) であり、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン/ $\alpha$ -オレフィン) が 40/60 ～ 95/5 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 0.5 ～ 50 の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ～ 1.0 dl/g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上であることを特徴とする請求項 2 ～ 13 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

15. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、ポリオレフィン樹脂 (D1) と、前記 SiH 基含有化合物 (B) とからなるゴム組成物であり、

該ゴム組成物は、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) 中に、ポリオレフィン樹脂 (D1) を熔融状態でミクロ分散させたブレンド物であり、

ポリオレフィン樹脂 (D1) の平均分散粒子径が 2  $\mu$ m 以下であり、



かつ、ポリオレフィン樹脂（D 1）とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）とのブレンド重量比〔（D 1）／（A）〕が5／95～50／50であることを特徴とする請求項2～13のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

16. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）と、

炭素原子数3～8の $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性 $\alpha$ -オレフィン単独重合体、またはこれらの $\alpha$ -オレフィンからなる結晶性 $\alpha$ -オレフィン共重合体であるポリオレフィン樹脂（D 1）と含有してなるゴム組成物であり、

該ゴム組成物は、

エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）中に、ポリオレフィン樹脂（D 1）を溶融状態でミクロ分散させたブレンド物であり、

ポリオレフィン樹脂（D 1）の平均分散粒子径が2  $\mu$ m以下であり、

ポリオレフィン樹脂（D 1）とエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエン共重合体ゴム（A）とのブレンド重量比〔（D 1）／（A）〕が5／95～50／50であり、かつ、

該ゴム組成物の硬さ（J I S K 6 3 0 1で規定されているA硬度＝Y）とポリオレフィン樹脂（D 1）の配合量（X）とが、

$$Y = (0.5 \pm 0.2) X + a$$

〔式中、Xは、ポリオレフィン樹脂（D 1）の配合量（単位：重量

部、成分 (A) と (D 1) との合計量は 100 重量部) であり、a は、ポリオレフィン樹脂 (D 1) 配合による硬度アップ分をこのゴム組成物の硬度から引いた硬度である] の関係を満たすことを特徴とする請求項 15 に記載の架橋可能なゴム組成物。

17. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ~ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 40 / 60 ~ 95 / 5 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 0.5 ~ 50 の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ~ 1.0 dl / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である

ことを特徴とする請求項 2 ~ 12、15、16 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

18. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) および前記 SiH 基含有化合物 (B) の他に、アルケニル基含有オルガノポリシロキサン (C) を含有してなることを特徴とする請求項 2 ~ 13 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

19. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重

合体ゴム（A）が、

（i）エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比  
（エチレン /  $\alpha$ -オレフィン）が 40 / 60 ～ 95 / 5 の範囲に  
あり、

（ii）ヨウ素価が 0.5 ～ 50 の範囲にあり、

（iii）135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ～ 1.0 dl / g の範囲にあり、

（iv）動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である

ことを特徴とする請求項 2 ～ 12、18 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

20. シート状に成形した後熱空気架橋して得られる熱空気架橋ゴムシートは、HB の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であり、150℃で72時間熱老化後の引張強さ保持率が50～300%であることを特徴とする請求項 2 ～ 12、18、19 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

21. 自動車用ウェザーストリップの製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

22. 前記自動車用ウェザーストリップが、ドアウェザーストリップ、トランクウェザーストリップ、ラゲージウェザーストリップ、ルーフサイドレールウェザーストリップ、スライドドアウェザーストリップ

ップ、ベンチレータウェザーストリップ、スライディンググループパネルウェザーストリップ、フロントウインドウェザーストリップ、リヤウインドウェザーストリップ、クォーターウインドウェザーストリップ、ロックピラーウェザーストリップ、ドアガラスアウナーウェザーストリップ、ドアガラスインナーウェザーストリップ、ダムウインドシールド、クラスランチャネル、ドアミラー用ブラケット、シールヘッドランプまたはシールカウルトップであることを特徴とする請求項 21 に記載の架橋可能なゴム組成物。

23. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする自動車用ウェザーストリップ。

24. 前記ゴム組成物が架橋可能なグラスラン用ゴム組成物であり、  
該ゴム組成物をシート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートは、

引張強度が 5 ～ 16 MPa であり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

25. 前記ゴム組成物が、架橋可能なグラスラン用ゴム組成物であり、  
前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）が、

（i）エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン/ $\alpha$ -オレフィン）が 60/40 ～ 80/20 の範囲

にあり、

(ii) ヨウ素価が1～30の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が1.5～3.5 dl/gの範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上である

ことを特徴とする請求項2～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

26. 前記自動車用ウェザーストリップが、請求項1～12、24、25のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなるグラスラン製品であることを特徴とする請求項23に記載の自動車用ウェザーストリップ。

27. 自動車用ホース、送水用ホースまたはガス用ホースの製造の際に用いられることを特徴とする請求項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

28. 前記自動車用ホースが、ブレーキホース、ラジエターホース、ヒーターホースまたはエアークリーナーホースであることを特徴とする請求項27に記載の架橋可能なゴム組成物。

29. 請求項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とするホース。

30. 前記ホースが、自動車用ホース、送水用ホースまたはガス用ホースであることを特徴とする請求項 29 に記載のホース。

31. 前記ゴム組成物が架橋可能なホース用ゴム組成物であり、

該ゴム組成物をシート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートは、

体積固有抵抗値（23℃）が  $10^3 \sim 10^{16} \Omega \cdot \text{cm}$  の範囲にあり、引張強度が 5 ～ 30 MPa の範囲にあり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

32. 前記ゴム組成物が、架橋可能なホース用ゴム組成物であり、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）が、

（i）エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン／ $\alpha$ -オレフィン）が 60／40 ～ 80／20 の範囲にあり、

（ii）ヨウ素価が 1 ～ 30 の範囲にあり、

（iii）135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ～ 5.0 dl / g の範囲にあり、

（iv）動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上であることを特徴とする請求項 2 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

33. 請求項 3 1 または 3 2 に記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とするホース。

34. 自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴムまたは建築用免震ゴムの製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

35. 前記自動車用防振ゴムが、エンジンマウント、液封エンジンマウント、ダンパーブリー、チェーンダンパー、キャブレターマウント、トーションダルダンパー、ストラットマウント、ラバーブッシュ、バンパゴム、ヘルパーゴム、スプリングシート、ショックアブソーバー、空気ばね、ボディマウント、バンパガード、マフラーサポート、ゴムカップリング、センターベアリングサポート、クラッチ用ゴム、デフマウント、サスペンションブッシュ、すべりブッシュ、クッションストラットバー、ストッパ、ハンドルダンパー、ラジエーターサポーターまたはマフラーハンガーであることを特徴とする請求項 3 4 に記載の架橋可能なゴム組成物。

36. 前記鉄道用防振ゴムが、スラブマット、バラスマットまたは軌道マットであることを特徴とする請求項 3 4 に記載の架橋可能なゴム組成物。

37. 前記産業機械用防振ゴムが、エキスパンションジョイント、フレキシブルジョイント、ブッシュ、またはマウントであることを特

徴とする請求項 34 に記載の架橋可能なゴム組成物。

38. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする防振ゴム。

39. 前記防振ゴムが、自動車用防振ゴム、鉄道用防振ゴム、産業機械用防振ゴムまたは建築用免震ゴムであることを特徴とする請求項 38 に記載の防振ゴム。

40. 前記ゴム組成物が架橋可能なゴム組成物であり、

該ゴム組成物をシート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートは、

引張強度が 5 ～ 16 MPa であり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

41. 前記ゴム組成物が、架橋可能な防振ゴム用ゴム組成物であり、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）が、

（i）エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比（エチレン／ $\alpha$ -オレフィン）が 60／40 ～ 80／20 の範囲にあり、

（ii）ヨウ素価が 1 ～ 30 の範囲にあり、



(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が1.5～3.5 dl/gの範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上である

ことを特徴とする請求項2～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

42. 請求項40または41に記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする防振ゴム製品。

43. 伝動ベルトまたは搬送用ベルトの製造の際に用いられることを特徴とする請求項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

44. 前記伝動ベルトが、Vベルト、平ベルトまたは歯付きベルトであることを特徴とする請求項43に記載の架橋可能なゴム組成物。

45. 前記搬送用ベルトが、軽搬送用ベルト、円筒形ベルト、ラフトップベルト、フランジ付き搬送用ベルト、U型ガイド付き搬送用ベルトまたはVガイド付き搬送用ベルトであることを特徴とする請求項43に記載の架橋可能なゴム組成物。

46. 請求項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とするベルト。

47. 前記ベルトが、伝動ベルトまたは搬送用ベルトであることを特徴とする請求項 46 に記載のベルト。

48. 自動車用カップ・シール材または産業機械用シール材の製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

49. 前記自動車用カップ・シール材が、マスタシリンダーピストンカップ、ホイールシリンダーピストンカップ、等速ジョイントブーツ、ピンブーツ、ダストカバー、ピストンシール、パッキン、Ｏリングまたはダイヤフラムであることを特徴とする請求項 48 に記載の架橋可能なゴム組成物。

50. 前記産業機械用シール材が、コンデンサーパッキン、Ｏリングまたはパッキンであることを特徴とする請求項 48 に記載の架橋可能なゴム組成物。

51. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とするシール材。

52. 前記シール材が、自動車用カップ・シール材または産業機械用シール材であることを特徴とする請求項 51 に記載のシール材。

53. 自動車用ウェザーストリップスポンジまたは他の発泡体の製造

の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

54. 前記自動車用ウェザーストリップスポンジが、ドアーウェザーストリップスポンジ、ボンネットウェザーストリップスポンジ、トランクルームウェザーストリップスポンジ、サンルーフウェザーストリップスポンジ、ベンチレーターウェザーストリップスポンジまたはコーナースポンジであることを特徴とする請求項 53 に記載の架橋可能なゴム組成物。

55. 前記他の発泡体が、ホース保護用スポンジ、クッション用スポンジ、断熱スポンジまたはインシュレーションパイプであることを特徴とする請求項 53 に記載の架橋可能なゴム組成物。

56. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする発泡体。

57. 前記発泡体が、自動車用ウェザーストリップスポンジであることを特徴とする請求項 56 に記載の発泡体。

58. 前記ゴム組成物が、架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物であり、

該ゴム組成物をシート状に成形した後熱空気架橋して得られる架橋ゴムシートが、比重が 0.1 ～ 0.8 の範囲にあり、かつ、吸水

率が50%以下であることを特徴とする請求項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

59. 前記ゴム組成物が、架橋可能なウェザーストリップスポンジ用ゴム組成物であり、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)が、

(i) エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比  
(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が60/40～90/10の範囲  
にあり、

(ii) ヨウ素価が1～30の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.3～5dl/gの範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が3以上であることを特徴とする請求項2～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

60. 請求項1～12、58、59のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とするウェザーストリップスポンジ。

61. 前記ゴム組成物が、架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物であり、

該ゴム組成物をシート状にした後熱空気架橋して得られる架橋ゴムシートの発泡体の比重が0.01～0.5の範囲にあり、吸水率

が 1 ～ 5 0 0 % の範囲にあり、アスカー C 硬度が 0 . 1 ～ 5 0 の範囲にあることを特徴とする請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

62. 前記ゴム組成物が、架橋可能な高発泡スポンジ用ゴム組成物であり、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ～ 2 0 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン /  $\alpha$ -オレフィン) が 6 0 / 4 0 ～ 9 0 / 1 0 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 1 ～ 3 0 の範囲にあり、

(iii) 1 3 5 °C のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0 . 3 ～ 4 d l / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上であることを特徴とする請求項 2 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

63. 請求項 1 ～ 1 2 、 6 1 、 6 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする高発泡スポンジ。

64. 前記高発泡スポンジが、断熱スポンジ、クッションスポンジ、シールスポンジまたは難燃スポンジであることを特徴とする請求項 6 3 に記載の高発泡スポンジ。

65. 被覆電線、電線ジョイントまたは電気絶縁部品の製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

66. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなる被覆材で被覆されていることを特徴とする被覆電線。

67. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする電線ジョイント。

68. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする電気絶縁部品。

69. 請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする半導電ゴム部品。

70. 前記ゴム組成物が、架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物であり、

該ゴム組成物をシート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートを成形した場合、該架橋ゴムシートは、

体積固有抵抗値（23℃）が  $10^7 \sim 10^{17} \Omega \cdot \text{cm}$  の範囲にあり、引張強度が 3 ～ 20 MPa の範囲にあり、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み（CS）が70%以下であることを特徴とする請求項 1 ～ 12 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

71. 前記ゴム組成物が、架橋可能な電気・電子部品用ゴム組成物であり、

前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)が、

(i) エチレンと炭素原子数3～20の $\alpha$ -オレフィンとのモル比  
(エチレン/ $\alpha$ -オレフィン)が60/40～90/10の範囲  
にあり、

(ii) ヨウ素価が1～30の範囲にあり、

(iii) 135℃のデカリン溶液で測定した極限粘度 $[\eta]$ が0.  
3～2.5 dl/gの範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が5以上である  
ことを特徴とする請求項2～12のいずれかに記載の架橋可能な  
ゴム組成物。

72. 請求項1～12、70、71のいずれかに記載の架橋可能な  
ゴム組成物からなることを特徴とする電気・電子部品。

73. 家庭用ゴム製品の製造の際に用いられることを特徴とする請求  
項1～12のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

74. 前記家庭用ゴム製品が、雨具、輪ゴム、靴、ゴム手袋、ラテッ  
クス製品またはゴルフボールであることを特徴とする請求項73に  
記載の架橋可能なゴム組成物。

75. 常温での架橋が可能であることを特徴とする請求項 2 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

76. 反応射出成形（R I M）用に用いられることを特徴とする請求項 2 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

77. 熱可塑性エラストマーの製造の際に用いられることを特徴とする請求項 2 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

78. エンジニアリングプラスチックの改質に用いられることを特徴とする請求項 2 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

79. 請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする家庭用ゴム製品。

80. 建築用シールスポンジの製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

81. 前記建築用シールスポンジが、ガスケット、エアータイト、目地材または戸当たり部のシールスポンジであることを特徴とする請求項 8 0 に記載の架橋可能なゴム組成物。

82. 前記発泡体が、建築用シールスポンジであることを特徴とする請求項 5 6 に記載の発泡体。



83. O A 機器用ロールまたは工業用ロールの製造の際に用いられることを特徴とする請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物。

84. 前記 O A 機器用ロールが、帯電ロール、転写ロール、現像ロールまたは給紙ロールであることを特徴とする請求項 8 3 に記載の架橋可能なゴム組成物。

85. 前記工業用ロールが、製鉄用ロール、製紙用ロールまたは印刷用電線ロールであることを特徴とする請求項 8 3 に記載の架橋可能なゴム組成物。

86. 請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする O A 機器用ロール。

87. 請求項 1 ～ 1 2 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする工業用ロール。

88. シート状とした後熱空気架橋して得られる熱空気架橋ゴムシートは、H B の鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートは、

(1) 1 5 0 ℃で 2 2 時間熱処理後の圧縮永久歪み ( C S ) が 7 0 %

以下であり、

- (2) 150℃で70時間DOT-3ブレーキ液に浸漬させた後の体積変化率( $\Delta V$ )が-10~+50%であり、
  - (3) 150℃で70時間熱老化後の引張強さ保持率が50~150%、伸び保持率が50%以上であり、
  - (4) 常態物性の引張強度が3~25MPaである
- ことを特徴とする架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物。

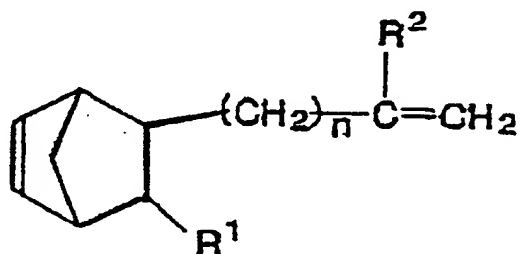
89. 前記ゴム組成物が、

非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) と、

SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物 (B) と

を含有してなり、

該ゴム組成物の160℃での架橋速度 ( $t_c(90)$ ) が15分以下であることを特徴とする請求項88に記載の架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物；

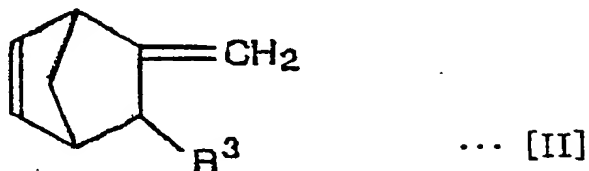


... [I]

[式中、 $n$  は 0 ないし 10 の整数であり、

$R^1$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基であり、

$R^2$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 5 のアルキル基である]、



[式中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

90. 前記エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、

(i) エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の  $\alpha$ -オレフィンとのモル比 (エチレン/ $\alpha$ -オレフィン) が 50/50 ～ 75/25 の範囲にあり、

(ii) ヨウ素価が 1 ～ 30 の範囲にあり、

(iii) 13.5℃のデカリン溶液で測定した極限粘度  $[\eta]$  が 0.3 ～ 2.5 dl/g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である

ことを特徴とする請求項 89 に記載の架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物。

91. 前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）およびSiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物（B）の他に、触媒（E）を含有してなることを特徴とする請求項89に記載の架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物。

92. 前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム（A）、SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物（B）および触媒（E）の他に、反応抑制剤（F）を含有してなることを特徴とする請求項91に記載の架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物。

93. 前記触媒（E）が白金系触媒であることを特徴とする請求項91または92に記載の架橋可能な液圧シリンダーシール用ゴム組成物。

94. 請求項88～93のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする液圧シリンダー部品。

95. シート状とした後熱空気架橋して得られる熱空気架橋ゴムシートは、HBの鉛筆による鉛筆硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、

シート状とした後熱プレスして架橋して得られる熱プレス架橋ゴムシートは、

- (1) 150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪み(CS)が70%以下であり、
- (2) 120℃で70時間エチレングリコール溶液に浸漬させた後の体積変化率( $\Delta V$ )が-20~+20%であり、
- (3) 120℃で70時間熱老化後の引張強さ保持率が50~150%、伸び保持率が50%以上、硬さ変化が0~+50ポイントであり、
- (4) 常態物性の引張強度が3~20MPaであり、
- (5) 金型汚染試験での汚染までのショット数が30回以上であることを特徴とする架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物。

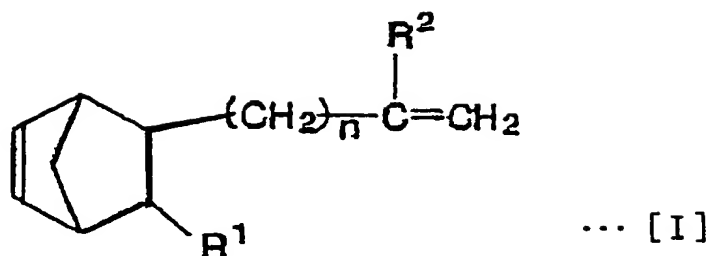
96. 前記ゴム組成物が、

非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム(A)と、

S i H基を1分子中に少なくとも2個持つS i H基含有化合物(B)と

を含有してなり、

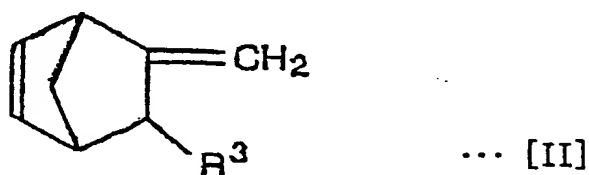
該ゴム組成物の160℃での架橋速度( $t_c(90)$ )が15分以下であることを特徴とする請求項95に記載の架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物；



[式中、n は 0 ないし 10 の整数であり、

R<sup>1</sup> は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基であり、

R<sup>2</sup> は水素原子または炭素原子数 1 ～ 5 のアルキル基である]、



[式中、R<sup>3</sup> は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

97. 前記エチレン・α-オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) が、

- (i) エチレンと炭素原子数 3 ～ 20 の α-オレフィンとのモル比 (エチレン / α-オレフィン) が 60 / 40 ～ 85 / 15 の範囲にあり、
- (ii) ヨウ素価が 0.5 ～ 30 の範囲にあり、
- (iii) 135℃ のデカリン溶液で測定した極限粘度 [η] が 0.3

～ 3 . 0 d l / g の範囲にあり、

(iv) 動的粘弾性測定器より求めた分岐指数が 5 以上である

ことを特徴とする請求項 9 6 に記載の架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物。

98. 前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) および S i H 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ S i H 基含有化合物 (B) の他に、触媒 (E) を含有してなることを特徴とする請求項 9 6 に記載の架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物。

99. 前記ゴム組成物が、エチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A)、S i H 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ S i H 基含有化合物 (B) および触媒 (E) の他に、反応抑制剤 (F) を含有してなることを特徴とする請求項 9 8 に記載の架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物。

100. 前記触媒 (E) が白金系触媒であることを特徴とする請求項 9 8 または 9 9 に記載の架橋可能な密封シールパッキン用ゴム組成物。

101. 請求項 9 5 ～ 1 0 0 のいずれかに記載の架橋可能なゴム組成物からなることを特徴とする密封シールパッキン部品。

102. 非共役ポリエンである下記一般式 [ I ] または [ II ] で表わさ

れる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエランダム共重合体ゴム (A) : 5 ~ 100 重量部と、

下記平均組成式 (1)

$$R^1_n Si O_{(4-n)/2} \quad (1)$$

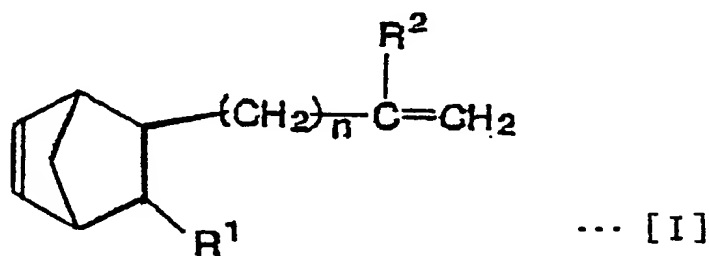
(式中、 $R^1$ は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$ は1.95 ~ 2.05の正数である。)

で示されるオルガノポリシロキサン (I) : 95 ~ 0 重量部

[成分 (A) と成分 (I) の合計量は100重量部] と、

SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物 (B1) : (A)、(I) 成分中の脂肪族不飽和結合1個当りケイ素原子に結合した水素原子を0.2 ~ 5個与える量と、

白金族金属系触媒 (E1) : 触媒量と含有してなることを特徴とする架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物 ;

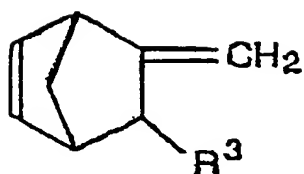


[式中、 $n$ は0ないし10の整数であり、

$R^1$ は水素原子または炭素原子数1 ~ 10のアルキル基であり、

$R^2$ は水素原子または炭素原子数1 ~ 5のアルキル基である]、





... [II]

[式中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

103. 更に発泡剤を成分 (A) と成分 (I) の合計 100 重量部に対して、0.5 ～ 30 重量部含有してなるオレフィン系ゴム組成物のスポンジ状硬化物よりなることを特徴とする請求項 102 に記載の架橋可能な建築用ガスケット用ゴム組成物。

104. 非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) : 5 ～ 100 重量部と、

下記平均組成式 (1)

$$R^1_n Si O_{(4-n)/2} \quad (1)$$

(式中、 $R^1$  は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$  は 1.95 ～ 2.05 の正数である。)

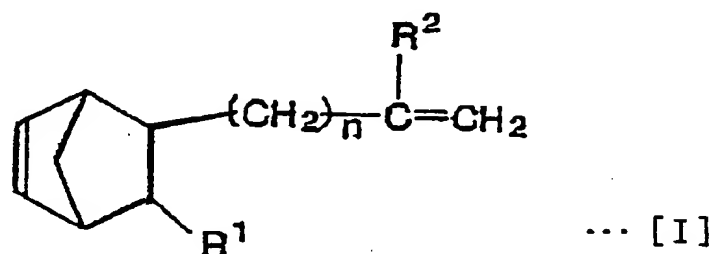
で示されるオルガノポリシロキサン (I) : 95 ～ 0 重量部

[成分 (A) と成分 (I) の合計量は 100 重量部] と、

SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ SiH 基含有化合物

(B 1) : (A)、(I) 成分中の脂肪族不飽和結合 1 個当りケイ素原子に結合した水素原子を 0.2 ~ 5 個与える量と、

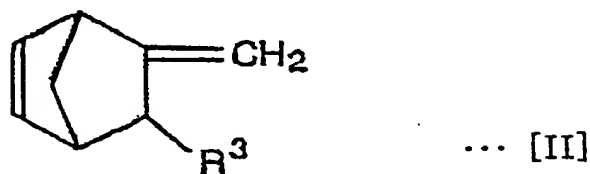
白金族金属系触媒 (E 1) : 触媒量と含有してなるオレフィン系ゴム組成物の硬化物よりなることを特徴とする建築用ガスケット；



[式中、n は 0 ないし 10 の整数であり、

R¹ は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基であり、

R² は水素原子または炭素原子数 1 ~ 5 のアルキル基である]、



[式中、R³ は水素原子または炭素原子数 1 ~ 10 のアルキル基である]。

105. 更に発泡剤を成分 (A) と成分 (I) の合計 100 重量部に対して、0.5 ~ 30 重量部含有してなるオレフィン系ゴム組成物の

スポンジ状硬化物よりなることを特徴とする請求項 104 に記載の建築用ガasket。

106. 非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) : 5 ~ 100 重量部と、

下記平均組成式 (1)

$$R^1_n Si O_{(4-n)/2} \quad (1)$$

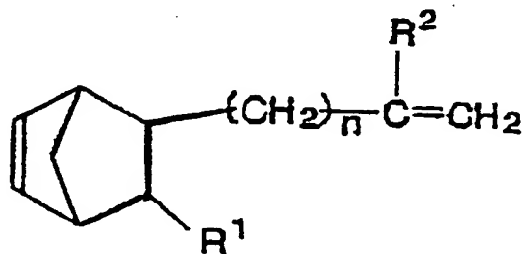
(式中、 $R^1$  は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$  は 1.95 ~ 2.05 の正数である。)

で示されるオルガノポリシロキサン (I) : 95 ~ 0 重量部

[成分 (A) と成分 (I) の合計量は 100 重量部] と、

SiH 基を 1 分子中に少なくとも 2 個持つ SiH 基含有化合物 (B1) : (A)、(I) 成分中の脂肪族不飽和結合 1 個当りケイ素原子に結合した水素原子を 0.2 ~ 5 個与える量と、

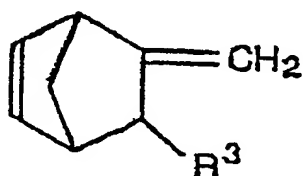
白金族金属系触媒 (E1) : 触媒量と含有してなることを特徴とする架橋可能なゴムロール用ゴム組成物；



[式中、 $n$  は 0 ないし 10 の整数であり、

$R^1$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基であり、

$R^2$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 5 のアルキル基である]、



... [II]

[式中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

107. 更に導電性物質を含有して、そのゴム硬化物層に導電性または半導電性を与えるようにした、請求項 106 に記載の架橋可能なゴムロール用ゴム組成物。

108. 更に有機過酸化物を含有する請求項 106 または 107 に記載の架橋可能なゴムロール用ゴム組成物。

109. 非共役ポリエンである下記一般式 [I] または [II] で表わされる少なくとも一種の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物から導かれる構成単位を有するエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム (A) : 5 ～ 100 重量部と、

下記平均組成式 (1)

$$R^1_n Si O_{(4-n)/2} \quad (1)$$

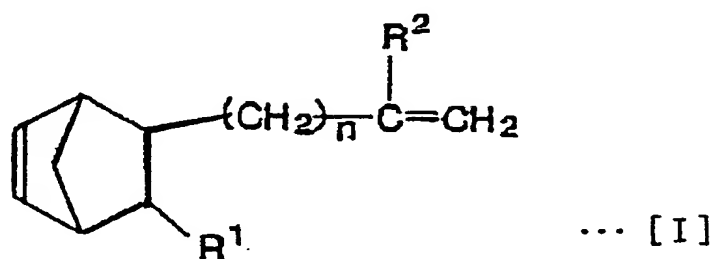
(式中、 $R^1$ は非置換または置換一価炭化水素基を示し、 $n$ は1.95～2.05の正数である。)

で示されるオルガノポリシロキサン (I) : 95～0重量部

[成分 (A) と成分 (I) の合計量は100重量部] と、

SiH基を1分子中に少なくとも2個持つSiH基含有化合物 (B1) : (A)、(I) 成分中の脂肪族不飽和結合1個当りケイ素原子に結合した水素原子を0.2～5個与える量と、

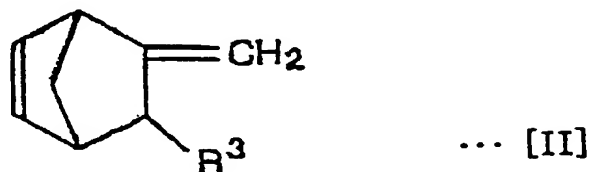
白金族金属系触媒 (E1) : 触媒量と含有してなるゴム組成物のゴム硬化物層が芯金の周囲に形成されてなることを特徴とするゴムロール；



[式中、 $n$ は0ないし10の整数であり、

$R^1$  は水素原子または炭素原子数1～10のアルキル基であり、

$R^2$  は水素原子または炭素原子数1～5のアルキル基である]、



[式中、 $R^3$  は水素原子または炭素原子数 1 ～ 10 のアルキル基である]。

110. 前記ゴム組成物が導電性物質を含有し、そのゴム硬化物層が導電性または半導電性を有する請求項 109 に記載のゴムロール。

111. 前記ゴム組成物が更に有機過酸化物を含有する請求項 109 または 110 に記載のゴムロール。

図 1

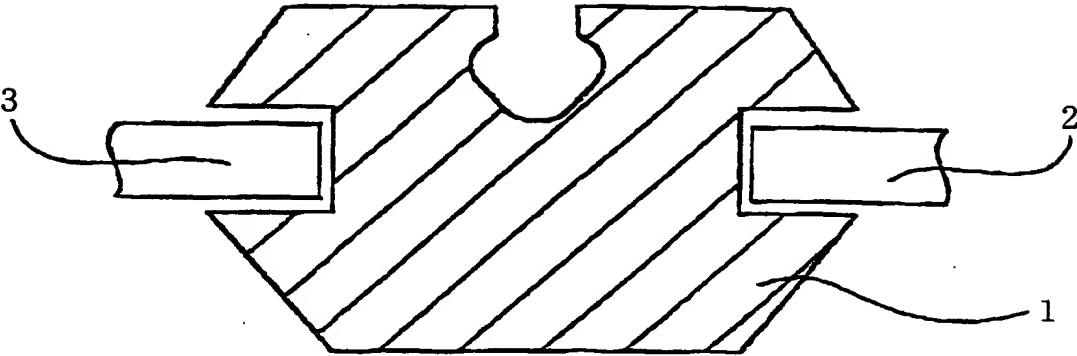
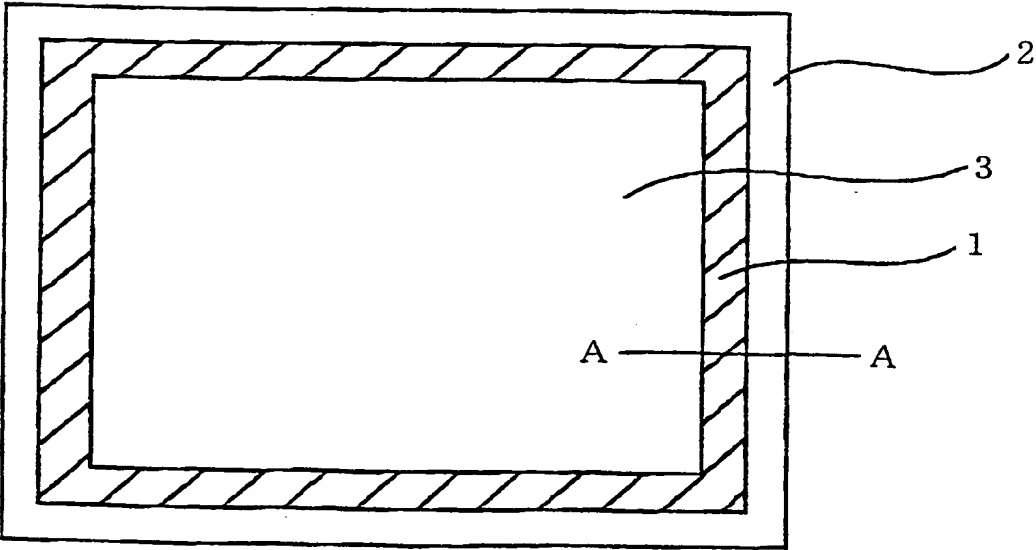


図 2







## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01547

## A. CLASSIFICATION OF SUBJECT MATTER

Int.Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

According to International Patent Classification (IPC) or to both national classification and IPC

## B. FIELDS SEARCHED

Minimum documentation searched (classification system followed by classification symbols)

Int.Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

Documentation searched other than minimum documentation to the extent that such documents are included in the fields searched

Electronic data base consulted during the international search (name of data base and, where practicable, search terms used)

Derwent WPIL "C08L23/16", "C08L83/05", "nonconjugate", "norbornene" in abstract

## C. DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 08-283492, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited. ), 29 October, 1996 (29.10.96), Claims; Par. Nos. [0001], [0007], [0019]	1-52, 58-62, 65-79, 83-111 1-111
Y	Claims; Par. Nos. [0001], [0007], [0019] (Family: none)	
X	JP, 09-137002, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited. ), 27 May, 1997 (27.05.97), Claims; Par. Nos. [0001], [0009], [0020]	1-52, 58-62, 65-79, 83-111 1-111
Y	Claims; Par. Nos. [0001], [0009], [0020] (Family: none)	
X	JP, 10-182879, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited. ), 07 July, 1998 (07.07.98), Claims; Par. Nos. [0001], [0013], [0028]	1-52, 58-62, 65-79, 83-111 1-111
Y	Claims; Par. Nos. [0001], [0013], [0028] (Family: none)	

☒ Further documents are listed in the continuation of Box C.

☐ See patent family annex.

\* Special categories of cited documents:  
 "A" document defining the general state of the art which is not  
 considered to be of particular relevance  
 "E" earlier document but published on or after the international filing  
 date  
 "L" document which may throw doubts on priority claim(s) or which is  
 cited to establish the publication date of another citation or other  
 special reason (as specified)  
 "O" document referring to an oral disclosure, use, exhibition or other  
 means  
 "P" document published prior to the international filing date but later  
 than the priority date claimed

"T" later document published after the international filing date or  
 priority date and not in conflict with the application but cited to  
 understand the principle or theory underlying the invention  
 "X" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered novel or cannot be considered to involve an inventive  
 step when the document is taken alone  
 "Y" document of particular relevance; the claimed invention cannot be  
 considered to involve an inventive step when the document is  
 combined with one or more other such documents, such  
 combination being obvious to a person skilled in the art  
 "&" document member of the same patent family

Date of the actual completion of the international search  
23 May, 2000 (23.05.00)

Date of mailing of the international search report  
06 June, 2000 (06.06.00)

Name and mailing address of the ISA/  
Japanese Patent Office

Authorized officer

Facsimile No.

Telephone No.

## INTERNATIONAL SEARCH REPORT

International application No.

PCT/JP00/01547

## C (Continuation). DOCUMENTS CONSIDERED TO BE RELEVANT

Category*	Citation of document, with indication, where appropriate, of the relevant passages	Relevant to claim No.
X	JP, 10-212389, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited. ), 11 August, 1998 (11.08.98), Claims; Par. Nos. [0001], [0009], [0022]	1-52, 58-62, 65-79, 83-111 1-111
Y	Claims; Par. Nos. [0001], [0009], [0022] (Family: none)	
X	EP, 776937, A2 (Advanced Elastomer Systems, L.P.), 04 June, 1997 (04.06.97), Claims; page 2, lines 4 to 11; page 3, lines 5 to 8; page 3, line 21 to page 4, 22 <sup>nd</sup> line from the bottom; page 6, lines 3 to 11	1-111
Y	Claims; page 2, lines 4 to 11; page 3, lines 5 to 8; page 3, line 21 to page 4, 22 <sup>nd</sup> line from the bottom; page 6, lines 3 to 11 & JP, 09-272741, A Claims; Par. Nos. 0001, 0010, 0013, 0034 & AU, 9948849, A & CA, 2190059, A & US, 5672660, A & BR, 9605769, A	1-111
PX	JP, 11-130914, A (Sumitomo Bakelite Company, Limited. ), 18 May, 1999 (18.05.99), Claims; Par. Nos. [0001], [0012], [0029]	1-52, 58-62, 65-79, 83-111 1-111
PA	Claims; Par. Nos. [0001], [0012], [0029] (Family: none)	

## 国際調査報告

国際出願番号 PCT/JP00/01547

## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

## 国際調査で利用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

Derwent WPIL アブストラクト中の "C08L23/16", "C08L83/05", "nonconjugate", "norbornene"

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 08-283492, A (住友ベークライト株式会社) 29. 10月. 1996 (29. 10. 96) 特許請求の範囲、段落0001、段落0007、段落0019	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0007、段落0019 ファミリーなし	1-111

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの  
「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの  
「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)  
「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献  
「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの  
「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの  
「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの  
「&」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 05. 00

国際調査報告の発送日

06.06.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原田 隆興

印

4 J

9167

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 09-137002, A (住友ベークライト株式会社) 27. 5月. 1997 (27. 05. 97) 特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0020	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0020 ファミリーなし	1-111
X	JP, 10-182879, A (住友ベークライト株式会社) 7. 7月. 1998 (07. 07. 98) 特許請求の範囲、段落0001、段落0013、段落0028	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0013、段落0028 ファミリーなし	1-111
X	JP, 10-212389, A (住友ベークライト株式会社) 11. 8月. 1998 (11. 08. 98) 特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0022	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0022 ファミリーなし	1-111
X	EP, 776937, A2 (Advanced Elastomer Systems, L.P.) 4. 6月. 1997 (04. 06. 97) 特許請求の範囲、第2頁第4行-第11行、第3頁第5行-第8行 第3頁第21行-第4頁下から第22行、第6頁第3行-第11行	1-111
Y	特許請求の範囲、第2頁第4行-第11行、第3頁第5行-第8行 第3頁第21行-第4頁下から第22行、第6頁第3行-第11行 & JP, 09-272741, A、特許請求の範囲、 段落0001、段落0010、段落0013、段落0034 & AU, 9948849, A & CA, 2190059, A & US, 5672660, A & BR, 9605769, A	1-111
PX	JP, 11-130914, A (住友ベークライト株式会社) 18. 5月. 1999 (18. 05. 99) 特許請求の範囲、段落0001、段落0012、段落0029	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
PA	特許請求の範囲、段落0001、段落0012、段落0029 ファミリーなし	1-111

PCT

EP



国際調査報告

(法8条、法施行規則第40、41条)  
〔PCT18条、PCT規則43、44〕

出願人又は代理人 の書類記号 SF-661	今後の手続きについては、国際調査報告の送付通知様式(PCT/ISA/220)及び下記5を参照すること。	
国際出願番号 PCT/JPO0/01547	国際出願日 (日.月.年) 14.03.00	優先日 (日.月.年) 16.03.99
出願人(氏名又は名称) 三井化学株式会社		

国際調査機関が作成したこの国際調査報告を法施行規則第41条(PCT18条)の規定に従い出願人に送付する。  
この写しは国際事務局にも送付される。

この国際調査報告は、全部で 4 ページである。

☐ この調査報告に引用された先行技術文献の写しも添付されている。

1. 国際調査報告の基礎

a. 言語は、下記に示す場合を除くほか、この国際出願がされたものに基づき国際調査を行った。

☐ この国際調査機関に提出された国際出願の翻訳文に基づき国際調査を行った。

b. この国際出願は、ヌクレオチド又はアミノ酸配列を含んでおり、次の配列表に基づき国際調査を行った。

☐ この国際出願に含まれる書面による配列表

☐ この国際出願と共に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出された書面による配列表

☐ 出願後に、この国際調査機関に提出されたフレキシブルディスクによる配列表

☐ 出願後に提出した書面による配列表が出願時における国際出願の開示の範囲を超える事項を含まない旨の陳述書の提出があった。

☐ 書面による配列表に記載した配列とフレキシブルディスクによる配列表に記録した配列が同一である旨の陳述書の提出があった。

2. ☐ 請求の範囲の一部の調査ができない(第I欄参照)。

3. ☐ 発明の単一性が欠如している(第II欄参照)。

4. 発明の名称は ☒ 出願人が提出したものを承認する。

☐ 次に示すように国際調査機関が作成した。

5. 要約は ☐ 出願人が提出したものを承認する。

☒ 第III欄に示されているように、法施行規則第47条(PCT規則38.2(b))の規定により国際調査機関が作成した。出願人は、この国際調査報告の発送の日から1カ月以内にこの国際調査機関に意見を提出することができる。

6. 要約書とともに公表される図は、  
第 \_\_\_\_\_ 図とする。 ☐ 出願人が示したとおりである。

☒ なし

☐ 出願人は図を示さなかった。

☐ 本図は発明の特徴を一層よく表している。

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## 第Ⅲ欄 要約 (第1ページの5の続き)

熱空気 (熱風) または熱プレスで架橋可能で、その熱空気架橋ゴムシートが、HBの鉛筆による硬度試験で表面に傷が全く付かず、かつ、150℃で22時間熱処理後の圧縮永久歪みが70%以下であって、具体的には、非共役ポリエンである特定の末端ビニル基含有ノルボルネン化合物よりなるエチレン・ $\alpha$ -オレフィン・非共役ポリエンランダム共重合体ゴム、SiH基を1分子中に2個以上有するSiH基含有化合物、および、必要に応じ白金族元素よりなる付加反応触媒、さらには反応抑制剤を含有してなる架橋可能なゴム組成物

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



## A. 発明の属する分野の分類 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

## B. 調査を行った分野

## 調査を行った最小限資料 (国際特許分類 (IPC))

Int. Cl<sup>7</sup> C08L21/00, C08L23/16, C08L45/00, C08L83/05,  
C08J5/00, C08J9/00

最小限資料以外の資料で調査を行った分野に含まれるもの

## 国際調査で使用した電子データベース (データベースの名称、調査に使用した用語)

Derwent WPIL アブストラクト中の "C08L23/16", "C08L83/05", "nonconjugate", "norbornene"

## C. 関連すると認められる文献

引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X ✓	JP, 08-283492, A (住友ベークライト株式会社) 29. 10月. 1996 (29. 10. 96) 特許請求の範囲、段落0001、段落0007、段落0019	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0007、段落0019 ファミリーなし	1-111

☒ C欄の続きにも文献が列挙されている。☐ パテントファミリーに関する別紙を参照。

## \* 引用文献のカテゴリー

「A」 特に関連のある文献ではなく、一般的技術水準を示すもの

「E」 国際出願日前の出願または特許であるが、国際出願日以後に公表されたもの

「L」 優先権主張に疑義を提起する文献又は他の文献の発行日若しくは他の特別な理由を確立するために引用する文献 (理由を付す)

「O」 口頭による開示、使用、展示等に言及する文献

「P」 国際出願日前で、かつ優先権の主張の基礎となる出願

の日の後に公表された文献

「T」 国際出願日又は優先日後に公表された文献であって出願と矛盾するものではなく、発明の原理又は理論の理解のために引用するもの

「X」 特に関連のある文献であって、当該文献のみで発明の新規性又は進歩性がないと考えられるもの

「Y」 特に関連のある文献であって、当該文献と他の1以上の文献との、当業者にとって自明である組合せによって進歩性がないと考えられるもの

「&amp;」 同一パテントファミリー文献

国際調査を完了した日

23. 05. 00

国際調査報告の発送日

06.06.00

国際調査機関の名称及びあて先

日本国特許庁 (ISA/JP)

郵便番号 100-8915

東京都千代田区霞が関三丁目4番3号

特許庁審査官 (権限のある職員)

原田 隆興



4 J

9167

電話番号 03-3581-1101 内線 3495

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

C (続き) . 関連すると認められる文献		
引用文献の カテゴリー*	引用文献名 及び一部の箇所が関連するときは、その関連する箇所の表示	関連する 請求の範囲の番号
X	JP, 09-137002, A (住友ベークライト株式会社) 27. 5月. 1997 (27. 05. 97) 特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0020	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0020 ファミリーなし	1-111
X	JP, 10-182879, A (住友ベークライト株式会社) 7. 7月. 1998 (07. 07. 98) 特許請求の範囲、段落0001、段落0013、段落0028	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0013、段落0028 ファミリーなし	1-111
X	JP, 10-212389, A (住友ベークライト株式会社) 11. 8月. 1998 (11. 08. 98) 特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0022	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
Y	特許請求の範囲、段落0001、段落0009、段落0022 ファミリーなし	1-111
X	EP, 776937, A2 (Advanced Elastomer Systems, L.P.) 4. 6月. 1997 (04. 06. 97) 特許請求の範囲、第2頁第4行-第11行、第3頁第5行-第8行 第3頁第21行-第4頁下から第22行、第6頁第3行-第11行	1-111
Y	特許請求の範囲、第2頁第4行-第11行、第3頁第5行-第8行 第3頁第21行-第4頁下から第22行、第6頁第3行-第11行 & JP, 09-272741, A、特許請求の範囲、 段落0001、段落0010、段落0013、段落0034 & AU, 9948849, A & CA, 2190059, A & US, 5672660, A & BR, 9605769, A	1-111
PX	JP, 11-130914, A (住友ベークライト株式会社) 18. 5月. 1999 (18. 05. 99) 特許請求の範囲、段落0001、段落0012、段落0029	1-52, 58-62, 65-79, 83-111
PA	特許請求の範囲、段落0001、段落0012、段落0029 ファミリーなし	1-111

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## PATENT COOPERATION TREATY

12K1

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
SUBMISSION OR TRANSMITTAL  
OF PRIORITY DOCUMENT

(PCT Administrative Instructions, Section 411)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SUZUKI, Shunichiro  
Suzuki & Associates  
Gotanda Yamazaki Bldg. 6F  
13-6, Nishigotanda 7-chome  
Shinagawa-ku  
Tokyo 141-0031  
JAPON

TC 1-000 ALL 1:00 PM

FEB - 9 2001

RECEIVED

Date of mailing (day/month/year) 13 November 2000 (13.11.00)	
Applicant's or agent's file reference SF-661	IMPORTANT NOTIFICATION
International application No. PCT/JP00/01547	International filing date (day/month/year) 14 March 2000 (14.03.00)
International publication date (day/month/year) 21 September 2000 (21.09.00)	Priority date (day/month/year) 16 March 1999 (16.03.99)
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al	

- The applicant is hereby notified of the date of receipt (except where the letters "NR" appear in the right-hand column) by the International Bureau of the priority document(s) relating to the earlier application(s) indicated below. Unless otherwise indicated by an asterisk appearing next to a date of receipt, or by the letters "NR", in the right-hand column, the priority document concerned was submitted or transmitted to the International Bureau in compliance with Rule 17.1(a) or (b).
- This updates and replaces any previously issued notification concerning submission or transmittal of priority documents.
- An asterisk(\*) appearing next to a date of receipt, in the right-hand column, denotes a priority document submitted or transmitted to the International Bureau but not in compliance with Rule 17.1(a) or (b). In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.
- The letters "NR" appearing in the right-hand column denote a priority document which was not received by the International Bureau or which the applicant did not request the receiving Office to prepare and transmit to the International Bureau, as provided by Rule 17.1(a) or (b), respectively. In such a case, the attention of the applicant is directed to Rule 17.1(c) which provides that no designated Office may disregard the priority claim concerned before giving the applicant an opportunity, upon entry into the national phase, to furnish the priority document within a time limit which is reasonable under the circumstances.

Priority date	Priority application No.	Country or regional Office or PCT receiving Office	Date of receipt of priority document
16 Marc 1999 (16.03.99)	11/70982	JP	17 July 2000 (17.07.00)
28 May 1999 (28.05.99)	11/149948	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/208943	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/208944	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209070	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209071	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209072	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209073	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209074	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209075	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland	Authorized officer  Shinji IGARASHI
Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Telephone No. (41-22) 338.83.38

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

## Continuation of Form PCT/IB/30

## NOTIFICATION CONCERNING SUBMISSION OR TRANSMITTAL OF PRIORITY DOCUMENT

Date of mailing (day/month/year)			
13 November 2000 (13.11.00)			
<u>Priority date</u>	<u>Priority application No.</u>	<u>Country or regional Office or PCT receiving Office</u>	<u>Date of receipt of priority document</u>
23 July 1999 (23.07.99)	11/209076	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209077	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209078	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)
23 July 1999 (23.07.99)	11/209079	JP	24 Marc 2000 (24.03.00)

003654433

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**



09/673608

525 Rec'd PCT/PTO 20 DEC 2000 PCT/JP00/0154

## PATENT COOPERATION TREATY

PCT

NOTIFICATION CONCERNING  
DOCUMENT TRANSMITTED

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

Commissioner  
US Department of Commerce  
United States Patent and Trademark  
Office, PCT  
2011 South Clark Place Room  
CP2/5C24  
Arlington, VA 22202  
ETATS-UNIS D'AMERIQUE  
in its capacity as designated Office

Date of mailing (day/month/year)

13 November 2000 (13.11.00)

International application No.

PCT/JP00/01547

International filing date (day/month/year)

14 March 2000 (14.03.00)

Applicant

MITSUI CHEMICALS, INC. et al

The International Bureau transmits herewith the following documents and number thereof:

\_\_\_\_\_ cop(ies) of priority document(s) (Rule 17.2(a))

RECEIVED  
MAR 23 2001  
TC 1700 MAIL ROOM

The International Bureau of WIPO  
34, chemin des Colombettes  
1211 Geneva 20, Switzerland

Facsimile No.: (41-22) 740.14.35

Authorized officer

Shinji IGARASHI

Telephone No.: (41-22) 338.83.38

Form PCT/IB/310 (July 1992)

003654436

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**

# PATENT COOPERATION TREATY

**PCT**

## NOTICE INFORMING THE APPLICANT OF THE COMMUNICATION OF THE INTERNATIONAL APPLICATION TO THE DESIGNATED OFFICES

(PCT Rule 47.1(c), first sentence)

From the INTERNATIONAL BUREAU

To:

SUZUKI, Shunichiro  
Suzuki & Associates  
Gotanda Yamazaki Bldg. 6F  
13-6, Nishigotanda 7-chome  
Shinagawa-ku  
Tokyo 141-0031  
JAPON

Date of mailing (day/month/year) 21 September 2000 (21.09.00)		<b>IMPORTANT NOTICE</b>	
Applicant's or agent's file reference SF-661			
International application No. PCT/JP00/01547	International filing date (day/month/year) 14 March 2000 (14.03.00)	Priority date (day/month/year) 16 March 1999 (16.03.99)	
Applicant MITSUI CHEMICALS, INC. et al			

1. Notice is hereby given that the International Bureau has communicated, as provided in Article 20, the international application to the following designated Offices on the date indicated above as the date of mailing of this Notice:

KR,US

In accordance with Rule 47.1(c), third sentence, those Offices will accept the present Notice as conclusive evidence that the communication of the international application has duly taken place on the date of mailing indicated above and no copy of the international application is required to be furnished by the applicant to the designated Office(s).

2. The following designated Offices have waived the requirement for such a communication at this time:

CN,EP

The communication will be made to those Offices only upon their request. Furthermore, those Offices do not require the applicant to furnish a copy of the international application (Rule 49.1(a-bis)).

3. Enclosed with this Notice is a copy of the international application as published by the International Bureau on 21 September 2000 (21.09.00) under No. WO 00/55251

### REMINDER REGARDING CHAPTER II (Article 31(2)(a) and Rule 54.2)

If the applicant wishes to postpone entry into the national phase until 30 months (or later in some Offices) from the priority date, a demand for international preliminary examination must be filed with the competent International Preliminary Examining Authority before the expiration of 19 months from the priority date.

It is the applicant's sole responsibility to monitor the 19-month time limit.

Note that only an applicant who is a national or resident of a PCT Contracting State which is bound by Chapter II has the right to file a demand for international preliminary examination.

### REMINDER REGARDING ENTRY INTO THE NATIONAL PHASE (Article 22 or 39(1))

If the applicant wishes to proceed with the international application in the national phase, he must, within 20 months or 30 months, or later in some Offices, perform the acts referred to therein before each designated or elected Office.

For further important information on the time limits and acts to be performed for entering the national phase, see the Annex to Form PCT/IB/301 (Notification of Receipt of Record Copy) and Volume II of the PCT Applicant's Guide.

The International Bureau of WIPO 34, chemin des Colombettes 1211 Geneva 20, Switzerland  Facsimile No. (41-22) 740.14.35	Authorized officer  J. Zahra  Telephone No. (41-22) 338.83.38
--	---

**THIS PAGE BLANK (USPTO)**